

PCT WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM
Internationales Büro
**INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)**

<p>(51) Internationale Patentklassifikation ⁶ : C07D 251/18, A01N 43/68, C07D 405/14, 409/12, 409/14, 411/12, 405/12, 401/12, 413/12, 417/12, 403/12</p>	A1	<p>(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 97/29095</p> <p>(43) Internationales Veröffentlichungsdatum: 14. August 1997 (14.08.97)</p>
<p>(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP97/00472</p> <p>(22) Internationales Anmeldedatum: 3. Februar 1997 (03.02.97)</p> <p>(30) Prioritätsdaten: 196 04 191.0 6. Februar 1996 (06.02.96) DE</p> <p>(71) Anmelder: HOECHST SCHERING AGREVO GMBH [DE/DE]; Mirastrasse 54, D-13509 Berlin (DE).</p> <p>(72) Erfinder: GIENCKE, Wolfgang; Am Steinberg 45, D-65719 Hofheim (DE). WILLMS, Lothar; Königsteiner Strasse 50, D-65719 Hofheim (DE). BAUER, Klaus; Doerner Strasse 53D, D-63456 Hanau (DE). BIERINGER, Hermann; Eichenweg 26, D-65817 Eppstein (DE). ROSINGER, Christopher; Am Hochfeld 33, D-65719 Hofheim (DE).</p>		<p>(81) Bestimmungsstaaten: AL, AM, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CN, CU, CZ, EE, GE, HU, IL, IS, JP, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LT, LV, MD, MG, MK, MN, MX, NO, NZ, PL, RO, RU, SG, SI, SK, TJ, TM, TR, TT, UA, UZ, VN, YU, ARIPO Patent (KE, LS, MW, SD, SZ, UG), europäisches Patent (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, ML, MR, NE, SN, TD, TG).</p> <p>Veröffentlicht <i>Mit internationalem Recherchenbericht.</i></p>
<p>(54) Title: 2,4-DIAMINO-1,3,5-TRIAZINES, PROCESSES FOR THEIR PREPARATION AND THEIR USE AS HERBICIDES AND PLANT-GROWTH REGULATORS</p> <p>(54) Bezeichnung: 2,4-DIAMINO-1,3,5-TRIAZINE, VERFAHREN ZU DEREN HERSTELLUNG UND DEREN VERWENDUNG ALS HERBIZIDE UND PFLANZENWACHSTUMSREGULATOREN</p> <div style="text-align: center; margin: 20px 0;"> <p style="text-align: right;">(I)</p> </div> <div style="text-align: center; margin: 20px 0;"> <p style="text-align: right;">(V)</p> </div>		
<p>(57) Abstract</p> <p>The invention concerns compounds of formula (I) and their salts, in which R¹ to R⁵, A, Z, X, X', n and m are defined as in claim 1. These substances are suitable as herbicides and plant-growth regulators and can be prepared by processes similar to known processes using novel intermediate products of formula (V).</p> <p>(57) Zusammenfassung</p> <p>Verbindungen der Formel (I) und deren Salze, worin R¹ bis R⁵, A, Z, X, X', n und m wie in Anspruch 1 definiert sind, eignen sich als Herbizide und Pflanzenwachstumsregulatoren. Die Herstellung kann analog bekannten Verfahren unter Verwendung neuer Zwischenprodukte der Formel (V) erfolgen.</p>		

31355 U.S. PTO

10771649



020304

LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AM	Armenien	GB	Vereinigtes Königreich	MX	Mexiko
AT	Österreich	GE	Georgien	NE	Niger
AU	Australien	GN	Guinea	NL	Niederlande
BB	Barbados	GR	Griechenland	NO	Norwegen
BE	Belgien	HU	Ungarn	NZ	Neuseeland
BF	Burkina Faso	IE	Irland	PL	Polen
BG	Bulgarien	IT	Italien	PT	Portugal
BJ	Benin	JP	Japan	RO	Rumänien
BR	Brasilien	KE	Kenya	RU	Russische Föderation
BY	Belarus	KG	Kirgisistan	SD	Sudan
CA	Kanada	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	SE	Schweden
CF	Zentrale Afrikanische Republik	KR	Republik Korea	SG	Singapur
CG	Kongo	KZ	Kasachstan	SI	Slowenien
CH	Schweiz	LI	Liechtenstein	SK	Slowakei
CI	Côte d'Ivoire	LK	Sri Lanka	SN	Senegal
CM	Kamerun	LR	Liberia	SZ	Swasiland
CN	China	LK	Litauen	TD	Tschad
CS	Tschechoslowakei	LU	Luxemburg	TG	Togo
CZ	Tschechische Republik	LV	Lettland	TJ	Tadschikistan
DE	Deutschland	MC	Monaco	TT	Trinidad und Tobago
DK	Dänemark	MD	Republik Moldau	UA	Ukraine
EE	Estland	MG	Madagaskar	UG	Uganda
ES	Spanien	ML	Mali	US	Vereinigte Staaten von Amerika
FI	Finnland	MN	Mongolei	UZ	Usbekistan
FR	Frankreich	MR	Mauretanien	VN	Vietnam
GA	Gabon	MW	Malawi		

2,4-Diamino-1,3,5-triazine, Verfahren zu deren Herstellung und deren Verwendung als Herbizide und Pflanzenwachstumsregulatoren

Die Erfindung betrifft das technische Gebiet der Herbizide und Pflanzenwachstumsregulatoren, insbesondere der Herbizide zur selektiven Bekämpfung von Unkräutern und Ungräsern in Nutzpflanzenkulturen.

Es ist bekannt, daß in 6-Stellung substituierte 2-Amino-4-(phenoxyalkyl-amino)-1,3,5-triazine herbizide und pflanzenwachstumsregulierende Eigenschaften besitzen; vgl. WO 94/24086, EP-A-509544, EP-A-492615. Weiterhin sind bereits 2-Amino-4-[arylamino- oder (hetero)arylalkyl-amino]-6-haloalkyl-1,3,5-triazine mit herbizider Wirkung bekannt; vgl. US-A-3,816,419, WO 90/09378, WO 88/02368.

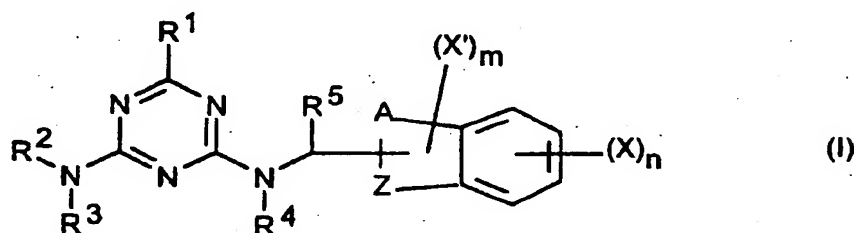
Die bekannten Wirkstoffe mit einer 4-[(Hetero)arylalkyl-amino]-gruppe enthalten dabei als "Alkyl" jeweils eine Methylenbrücke, welche gegebenenfalls noch verzweigt substituiert ist.

Die bekannten Wirkstoffe weisen bei ihrer Anwendung teilweise Nachteile auf, sei es unzureichende herbizide Wirkung gegen Schadpflanzen, zu geringes Spektrum der Schadpflanzen, das mit einem Wirkstoff bekämpft werden kann, oder zu geringe Selektivität in Nutzpflanzenkulturen. Andere Wirkstoffe lassen sich wegen schwer zugänglicher Vorprodukte und Reagenzien im industriellen Maßstab nicht wirtschaftlich herstellen oder besitzen nur unzureichende chemische Stabilitäten.

Aufgabe der Erfindung ist es, alternative Wirkstoffe vom Typ der 2,4-Diamino-1,3,5-Triazine bereitzustellen, die als Herbizide oder Pflanzenwachstumsregulatoren eingesetzt werden können.

In der Deutschen Patentanmeldung Nr. 19 522 137.0 werden unter anderen Herbizide des genannten Typs vorgeschlagen, die in 6-Stellung am Triazinring einen gegebenenfalls substituierten Cycloalkylrest oder einen Heterocyclus mit einem Sauerstoff-, Stickstoff- oder Schwefelatom enthalten und in 4-Stellung einen Phenylalkylrest mit einer linearen Propylenbrücke aufweisen, die gegebenenfalls noch verzweigt substituiert ist.

Gegenstand der vorliegenden Erfindung sind Verbindungen der Formel (I) und deren Salze,



worin

R^1 (C_1-C_6) Alkyl,

das unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, Cyano, Nitro, Thiocyanato, Hydroxy, (C_1-C_4) Alkoxy, (C_1-C_4) Alkylthio, (C_1-C_4) Alkylsulfinyl, (C_1-C_4) Alkylsulfonyl, (C_2-C_4) Alkenyl, (C_2-C_4) Alkynyl, Phenyl, das unsubstituiert oder substituiert ist, und (C_3-C_9) Cycloalkyl, das unsubstituiert oder substituiert ist, und Heterocyclyl mit 3 bis 6 Ringatomen und 1 bis 3 Heteroringatomen aus der Gruppe N, O und S, wobei der Ring unsubstituiert oder substituiert ist, substituiert ist, oder

einen carbocyclischen oder heterocyclischen Rest mit 3 bis 6 Ringatomen, der unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, Nitro, Cyano, Thiocyanato und einen Rest der Formel B^1-Y^1 , wobei B^1 und Y^1 wie weiter unten definiert sind, substituiert ist, wobei Substituenten paarweise auch einen carbocyclischen

3

oder h t rocyclischen Ring mit 3 bis 6 Ringatomen bilden können, der unsubstituiert oder substituiert ist,

vorzugsweise R^1 einen Rest mit insgesamt 1 bis 20 C-Atomen, insbesondere 1 bis 10 C-Atomen,

R^2 und R^3 jeweils unabhängig voneinander Wasserstoff, Amino oder Alkylamino oder Dialkylamino mit jeweils 1 bis 6 C-Atomen im Alkylrest, einen acyclischen oder cyclischen Kohlenwasserstoffrest oder Kohlenwasserstoffoxyrest mit jeweils 1 bis 10 C-Atomen, vorzugsweise mit 1 bis 6 C-Atomen, oder einen Heterocyclylrest, Heterocyclioxyrest oder Heterocyclylaminorest mit jeweils 3 bis 6 Ringatomen und 1 bis 3 Heteroringatomen aus der Gruppe N, O und S, wobei jeder der fünf letztgenannten Reste unsubstituiert oder substituiert ist, oder einen Acylrest oder

R^2 und R^3 gemeinsam mit dem Stickstoffatom der Gruppe NR^2R^3 einen heterocyclischen Rest mit 3 bis 6 Ringatomen und 1 bis 4 Heteroringatomen, wobei neben dem N-Atom die gegebenenfalls weiteren Heteroringatome aus der Gruppe N, O und S ausgewählt sind und der Rest unsubstituiert oder substituiert ist,

R^4 Wasserstoff, Amino, Alkylamino oder Dialkylamino mit jeweils 1 bis 6 C-Atomen im Alkylrest, einen acyclischen oder cyclischen Kohlenwasserstoffrest oder Kohlenwasserstoffoxyrest mit jeweils 1 bis 10 C-Atomen, vorzugsweise mit 1 bis 6 C-Atomen, oder einen Heterocyclylrest, Heterocyclioxyrest oder Heterocyclylaminorest mit jeweils 3 bis 6 Ringatomen und 1 bis 3 Heteroringatomen aus der Gruppe N, O und S, wobei jeder der fünf letztgenannten Reste unsubstituiert oder substituiert ist, oder einen Acylrest,

R^5 Wasserstoff, Nitro, Cyano, Thiocyanato oder einen Rest der Formel $-B^2-Y^2$, wobei B^2 und Y^2 wie weiter unten definiert sind,

A-Z eine divalent Brücke der Formel

$-(CH_2)_a-$,
 $-W^1-(CH_2)_b-W^2-$,
 $-CH_2CH_2CH_2-W^3-$,
 $-W^4-CH=CH-W^5-$,
 $-CH=CH-CH_2-W^6-$,
 $-CH_2CH_2NR-$,
 $-W^7-CH=N-$,
 $-W^8CH_2-N=N-$,
 $-CH=CH-N=N-$,
 $-N=CH-CH=N-$,
 $-CH=CH-CH_2-$,
 $-CH=CH-CH=CH-$,
 $-CH=CH-NR-$

worin a die ganze Zahl 2, 3 oder 4 ist,
 worin b die ganze Zahl 1 oder 2 ist und W^1 , W^2
 unabhängig voneinander NR, O oder S
 bedeuten,
 worin W^3 NR, O oder S bedeutet,
 worin W^4 , W^5 unabhängig voneinander NR, O
 oder S bedeuten,
 worin W^6 eine Gruppe der Formel NR, O oder S
 bedeutet, oder
 worin W^7 eine Gruppe NR, O, oder S bedeutet,
 worin W^8 eine Gruppe NR, O oder S bedeutet,

oder

wobei R in den genannten Gruppen NR jeweils H oder (C₁-C₄) Alkyl bedeutet.

(X')_m m Substituenten X' und dabei X' jeweils unabhängig voneinander Halogen, (C₁-C₆)Alkyl, (C₂-C₆)Alkenyl, (C₂-C₈)Alkynyl, (C₁-C₆)Alkoxy, (C₂-C₆)Alkenyloxy, (C₂-C₆)Alkinyloxy, [(C₁-C₄)Alkyl]-carbonyl, [(C₁-C₄)Alkoxy]-carbonyl oder [(C₁-C₄)Alkylthio]-carbonyl, wobei die kohlenwasserstoffhaltigen Teile in den letztgenannten 9 Resten unsubstituiert oder substituiert sind, oder die Oxogruppe,

(X)_n n Substituenten X und dabei X jeweils unabhängig voneinander Halogen, Nitro, Cyano, (C₁-C₆)Alkyl, (C₂-C₆)Alkenyl, (C₂-C₆)Alkinyl, (C₁-C₆)Alkoxy, (C₂-C₆)Alkenyloxy, (C₂-C₆)Alkinyloxy, [(C₁-C₄)Alkyl]-carbonyl, [(C₁-C₄)Alkoxy]-carbonyl oder [(C₁-C₄)Alkylthio]-carbonyl, wobei die kohlenwasserstoffhaltigen Teile in den letztgenannten 9 Resten

unsubstituiert oder substituiert sind, oder einen Rest der Formel $I-B^3-Y^3$, wobei B^3 und Y^3 wie unten definiert sind, oder zwei benachbarte Reste X gemeinsam einen ankondensierten Cyclus mit 4 bis 6 Ringatomen, der carbocyclisch ist oder Heteroringatome aus der Gruppe O, S und N enthält und der unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C_1-C_4) Alkyl und Oxo substituiert ist,

B^1, B^2, B^3 jeweils unabhängig voneinander eine direkte Bindung oder eine divalente Gruppe der Formel $-O-$, $-S(O)_p-$, $-S(O)_p-O-$, $-O-S(O)_p-$, $-CO-$, $-O-CO-$, $-CO-O-$, $-NR'-$, $-O-NR'-$, $-NR'-O-$, $-NR'-CO-$ oder $-CO-NR'-$, wobei $p = 0, 1$ oder 2 ist und R' Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 6 C-Atomen, Phenyl, Benzyl, Cycloalkyl mit 3 bis 6 C-Atomen oder Alkanoyl mit 1 bis 6 C-Atomen ist,

Y^1, Y^2 jeweils unabhängig voneinander H oder einen acyclischen Kohlenwasserstoffrest, beispielsweise jeweils mit 1 bis 20 C-Atomen, vorzugsweise mit 1 bis 10 C-Atomen, oder einen cyclischen Kohlenwasserstoffrest mit 3 bis 8 C-Atomen, vorzugsweise 3 bis 6 C-Atomen, oder einen heterocyclischen Rest mit 3 bis 9 Ringatomen und 1 bis 3 Heteroringatomen aus der Gruppe N, O und S, wobei jeder der drei letztgenannten Reste unsubstituiert oder substituiert ist,

Y^3 einen aromatischen, gesättigten oder teilgesättigten carbocyclischen oder heterocyclischen Rest bedeutet, wobei der cyclische Rest substituiert oder unsubstituiert ist,

m eine ganze Zahl von Null bis zur Anzahl der Wasserstoffatome im Grundkörper der divalenten Brücke, vorzugsweise 0, 1 oder 2, insbesondere 0,

n 0, 1, 2, 3 oder 4, vorzugsweise 0, 1 oder 2, bedeuten.

Die Verbindungen der Formel (I) können durch Anlagerung einer geeigneten anorganischen oder organischen Säure, wie beispielsweise HCl, HBr, H_2SO_4

oder HNO_3 , aber auch Oxalsäure oder Sulfonsäuren an eine basische Gruppe, wie z.B. Amino oder Alkylamino, Salze bilden. Geeignete Substituenten, die in deprotonierter Form, wie z.B. Sulfonsäuren oder Carbonsäuren, vorliegen, können innere Salze mit ihrerseits protonierbaren Gruppen, wie Aminogruppen bilden. Salze können ebenfalls dadurch gebildet werden, daß bei geeigneten Substituenten, wie z.B. Sulfonsäuren oder Carbonsäuren, der Wasserstoff durch ein für die Landwirtschaft geeignetes Kation ersetzt wird. Diese Salze sind beispielsweise Metallsalze, insbesondere Alkalimetallsalze oder Erdalkalimetallsalze, insbesondere Natrium- und Kaliumsalze, oder auch Ammoniumsalze oder Salze mit organischen Aminen.

In Formel (I) und allen nachfolgenden Formeln können die Reste Alkyl, Alkoxy, Haloalkyl, Haloalkoxy, Alkylamino und Alkylthio sowie die entsprechenden ungesättigten und/oder substituierten Reste im Kohlenstoffgerüst jeweils geradkettig oder verzweigt sein. Wenn nicht speziell angegeben, sind bei diesen Resten die niederen Kohlenstoffgerüste, z.B. mit 1 bis 6 C-Atomen bzw. bei ungesättigten Gruppen mit 2 bis 6 C-Atomen, bevorzugt. Alkylreste, auch in den zusammengesetzten Bedeutungen wie Alkoxy, Haloalkyl usw., bedeuten z.B. Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, t- oder 2-Butyl, Pentyle, Hexyle, wie n-Hexyl, i-Hexyl und 1,3-Dimethylbutyl, Heptyle, wie n-Heptyl, 1-Methylhexyl und 1,4-Dimethylpentyl; Alkenyl- und Alkynylreste haben die Bedeutung der den Alkylresten entsprechenden möglichen ungesättigten Reste; Alkenyl bedeutet z.B. Allyl, 1-Methylprop-2-en-1-yl, 2-Methyl-prop-2-en-1-yl, But-2-en-1-yl, But-3-en-1-yl, 1-Methyl-but-3-en-1-yl und 1-Methyl-but-2-en-1-yl; Alkynyl bedeutet z.B. Propargyl, But-2-in-1-yl, But-3-in-1-yl, 1-Methyl-but-3-in-1-yl.

Alkenyl in Form von $(\text{C}_3\text{-C}_4)$ Alkenyl bedeutet vorzugsweise einen Alkenylrest mit 3 oder 4 C-Atomen, bei dem die Mehrfachbindung nicht zwischen C-1 und C-2 liegt, wobei C-1 das C-Atom mit der Position von "yl" bezeichnet. Entsprechendes gilt für $(\text{C}_3\text{-C}_4)$ Alkynyl.

Cycloalkyl bedeutet ein carbocyclisches, gesättigtes Ringsystem mit vorzugsweise 3-8 C-Atomen, z.B. Cyclopropyl, Cyclopentyl oder Cyclohexyl.

Halogen bedeutet beispielsweise Fluor, Chlor, Brom oder Iod. Haloalkyl, -alkenyl und -alkinyl bedeuten durch Halogen, vorzugsweise durch Fluor, Chlor und/oder Brom, insbesondere durch Fluor oder Chlor, teilweise oder vollständig substituiertes Alkyl, Alkenyl bzw. Alkinyl, z.B. Monohaloalkyl (= Monohalogenalkyl), Perhaloalkyl, CF_3 , CHF_2 , CH_2F , CF_3CF_2 , CH_2FCHCl , CH_2CF_3 , CCl_3 , CHCl_2 , $\text{CH}_2\text{CH}_2\text{Cl}$; Haloalkoxy ist z.B. OCF_3 , OCHF_2 , OCH_2F , $\text{CF}_3\text{CF}_2\text{O}$, OCH_2CF_3 und $\text{OCH}_2\text{CH}_2\text{Cl}$; entsprechendes gilt für Haloalkenyl und andere durch Halogen substituierte Reste.

Ein Kohlenwasserstoffrest ist ein geradkettiger, verzweigter oder cyclischer und gesättigter oder ungesättigter aliphatischer oder aromatischer Kohlenwasserstoffrest, z.B. Alkyl, Alkenyl, Alkinyl, Cycloalkyl, Cycloalkenyl oder Aryl; Aryl bedeutet dabei ein mono-, bi- oder polycyclisches aromatisches System, beispielsweise Phenyl, Naphthyl, Tetrahydronaphthyl, Indenyl, Indanyl, Pentalenyl, Fluorenyl und ähnliches, vorzugsweise Phenyl; vorzugsweise bedeutet ein Kohlenwasserstoffrest Alkyl, Alkenyl oder Alkinyl mit bis zu 12 C-Atomen oder Cycloalkyl mit 3, 4, 5, 6 oder 7 Ringatomen oder Phenyl; entsprechendes gilt für einen Kohlenwasserstoffrest in einem Kohlenwasserstoffoxyrest.

Ein heterocyclischer Rest oder Ring (Heterocyclyl) kann gesättigt, ungesättigt oder heteroaromatisch sein; er enthält vorzugsweise ein oder mehrere Heteroeinheiten im Ring, d.h. Heteroatome oder Ringglieder, welche auch substituierte Heteroatome einschließen, vorzugsweise aus der Gruppe N, O, S, SO, SO_2 ; vorzugsweise ist er ein aliphatischer Heterocyclylrest mit 3 bis 7 Ringatomen oder ein heteroaromatischer Rest mit 5 oder 6 Ringatomen und enthält 1, 2 oder 3 Heteroeinheiten. Der heterocyclische Rest kann z.B. ein heteroaromatischer Rest oder Ring (Heteroaryl) sein, wie z.B. ein mono-, bi-

oder polycyclisches aromatisches System, in dem mindestens 1 Ring ein oder mehrere Heteroatome enthält, beispielsweise Pyridyl, Pyrimidinyl, Pyridazinyl, Pyrazinyl, Thienyl, Thiazolyl, Oxazolyl, Furyl, Pyrrolyl, Pyrazolyl und Imidazolyl, oder ist ein partiell oder vollständig hydrierter Rest wie Oxiranyl, Pyrrolidyl, Piperidyl, Piperazinyl, Dioxolanyl, Morpholinyl, Tetrahydrofuryl. Als Substituenten für einen substituierten heterocyclischen Rest kommen die weiter unten genannten Substituenten in Frage, zusätzlich auch Oxo. Die Oxogruppe kann auch an den Heteroringatomen, die in verschiedenen Oxidationsstufen existieren können, z.B. bei N und S, auftreten.

Substituierte Reste, wie substituierte Kohlenwasserstoffreste, z.B. substituiertes Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Aryl, Phenyl und Benzyl, oder substituiertes Heterocyclyl oder Heteroaryl, bedeuten beispielsweise einen vom unsubstituierten Grundkörper abgeleiteten substituierten Rest, wobei die Substituenten beispielsweise einen oder mehrere, vorzugsweise 1, 2 oder 3 Reste aus der Gruppe Halogen, Alkoxy, Haloalkoxy, Alkylthio, Hydroxy, Amino, Nitro, Carboxy, Cyano, Azido, Alkoxycarbonyl, Alkylcarbonyl, Formyl, Carbamoyl, Mono- und Dialkylaminocarbonyl, substituiertes Amino, wie Acylamino, Mono- und Dialkylamino, und Alkylsulfinyl, Haloalkylsulfinyl, Alkylsulfonyl, Haloalkylsulfonyl und, im Falle cyclischer Reste, auch Alkyl und Haloalkyl bedeuten; im Begriff "substituierte Reste" wie substituiertes Alkyl etc. sind als Substituenten zusätzlich zu den genannten gesättigten kohlenwasserstoffhaltigen Resten entsprechende ungesättigte aliphatische und aromatische Reste, wie gegebenenfalls substituiertes Alkenyl, Alkynyl, Alkenyloxy, Alkynyloxy, Phenyl, Phenoxy etc. eingeschlossen. Bei Resten mit C-Atomen sind solche mit 1 bis 4 C-Atomen, insbesondere 1 oder 2 C-Atomen, bevorzugt. Bevorzugt sind in der Regel Substituenten aus der Gruppe Halogen, z.B. Fluor und Chlor, (C₁-C₄)Alkyl, vorzugsweise Methyl oder Ethyl, (C₁-C₄)Haloalkyl, vorzugsweise Trifluormethyl, (C₁-C₄)Alkoxy, vorzugsweise Methoxy oder Ethoxy, (C₁-C₄)Haloalkoxy, Nitro und Cyano. Besonders bevorzugt sind dabei die Substituenten Methyl, Methoxy und Chlor.

Mono- oder disubstituiertes Amino bedeutet einen chemisch stabilen Rest aus der Gruppe der substituierten Aminoreste, welche beispielsweise durch einen bzw. zwei gleiche oder verschiedene Reste aus der Gruppe Alkyl, Alkoxy, Acyl und Aryl N-substituiert sind; vorzugsweise Monoalkylamino, Dialkylamino, Acylamino, Arylamino, N-Alkyl-N-arylamino sowie N-Heterocyclen; dabei sind Alkylreste mit 1 bis 4 C-Atomen bevorzugt; Aryl ist dabei vorzugsweise Phenyl oder substituiertes Phenyl; für Acyl gilt dabei die weiter unten genannte Definition, vorzugsweise (C₁-C₄)Alkanoyl. Entsprechendes gilt für substituiertes Hydroxylamino oder Hydrazino.

Gegebenenfalls substituiertes Phenyl ist vorzugsweise Phenyl, das unsubstituiert oder ein- oder mehrfach, vorzugsweise bis zu dreifach durch gleiche oder verschiedene Reste aus der Gruppe Halogen, (C₁-C₄)Alkyl, (C₁-C₄)Alkoxy, (C₁-C₄)Halogenalkyl, (C₁-C₄)Halogenalkoxy und Nitro substituiert ist, z.B. o-, m- und p-Tolyl, Dimethylphenyle, 2-, 3- und 4-Chlorphenyl, 2-, 3- und 4-Trifluor- und -Trichlorphenyl, 2,4-, 3,5-, 2,5- und 2,3-Dichlorphenyl, o-, m- und p-Methoxyphenyl.

Ein Acylrest bedeutet den Rest einer organischen Säure, z.B. den Rest einer Carbonsäure und Reste davon abgeleiteter Säuren wie der Thiocarbonsäure, gegebenenfalls N-substituierten Iminocarbonsäuren oder den Rest von Kohlensäuremonoestern, gegebenenfalls N-substituierter Carbaminsäure, Sulfonsäuren, Sulfinsäuren, Phosphonsäuren, Phosphinsäuren. Acyl bedeutet beispielsweise Formyl, Alkylcarbonyl wie [(C₁-C₄)Alkyl]-carbonyl, Phenylcarbonyl, Alkyloxycarbonyl, Phenyloxycarbonyl, Benzyloxycarbonyl, Alkylsulfonyl, Alkylsulfinyl, N-Alkyl-1-iminoalkyl und andere Reste von organischen Säuren. Dabei können die Reste jeweils im Alkyl- oder Phenylteil noch weiter substituiert sein, beispielsweise im Alkylteil durch ein oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, Alkoxy, Phenyl und Phenoxy; Beispiele für Substituenten im Phenylteil sind die bereits weiter oben allgemein für substituiertes Phenyl erwähnten Substituenten.

Gegenstand der Erfindung sind auch alle Stereoisomeren, die von Formel I (I) umfaßt sind, und deren Gemische. Solche Verbindungen der Formel (I) enthalten ein oder mehrere asymmetrische C-Atome oder auch Doppelbindungen, die in der allgemeinen Formel (I) nicht gesondert angegeben sind. Die durch ihre spezifische Raumform definierten möglichen Stereoisomeren, wie Enantiomere, Diastereomere, Z- und E-Isomere sind alle von der Formel (I) umfaßt und können nach üblichen Methoden aus Gemischen der Stereoisomeren erhalten oder auch durch stereoselektive Reaktionen in Kombination mit dem Einsatz von stereochemisch reinen Ausgangsstoffen hergestellt werden.

Vor allem aus den Gründen der höheren herbiziden Wirkung, besseren Selektivität und/oder besseren Herstellbarkeit sind erfindungsgemäße Verbindungen der genannten Formel (I) oder deren Salze von besonderem Interesse, worin

R^1 (C₁-C₄)Alkyl,

das unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C₁-C₄)Alkoxy, (C₁-C₄)Alkylthio, (C₁-C₄)Alkylsulfonyl, Phenyl, das unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C₁-C₄)Alkyl und (C₁-C₄)Haloalkyl, (C₁-C₄)Alkoxy, (C₁-C₄)Haloalkoxy, (C₁-C₄)Alkylthio, Amino, Mono- und Di[(C₁-C₄)alkyl]amino, (C₁-C₄)Alkanoylamino, Benzoylamino, Nitro, Cyano, [(C₁-C₄)Alkyl]carbonyl, Formyl, Carbamoyl, Mono- und Di-[(C₁-C₄)alkyl]aminocarbonyl und (C₁-C₄)Alkylsulfonyl substituiert ist, und (C₃-C₉)Cycloalkyl, das unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste (C₁-C₄)Alkyl substituiert ist, und Heterocyclyl mit 3 bis 6 Ringatomen und 1 bis 3 Heteroringatomen aus der Gruppe N, O und S, wobei der Ring unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C₁-C₄)Alkyl und Oxo substituiert ist,

substituiert ist, oder

(C₃-C₇)Cycloalkyl, (C₃-C₇)Cycloalkenyl oder einen heterocyclischen Rest mit 3 bis 6 Ringatomen und 1 bis 3 Heteroringatomen aus der Gruppe N, O und S, wobei der Cycloalkylrest oder der heterocyclische Rest jeweils unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, Nitro, Cyano, Thiocyanato und einen Rest der Formel B¹-Y¹, wobei B¹ und Y¹ wie weiter unten definiert sind, substituiert ist und/oder Substituenten aufweist, die paarweise einen ankondensierten Benzolring oder einen ankondensierten oder in Spiroform verknüpften Ring aus der Gruppe (C₃-C₇)Cycloalkyl, (C₃-C₇)Cycloalkenyl und einen heterocyclischen Ring mit 3 bis 6 Ringatomen bilden können, der unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C₁-C₄)Alkyl, (C₁-C₄)Haloalkyl und Oxo substituiert ist, oder Phenyl, das unsubstituiert oder substituiert ist, vorzugsweise R¹ einen Rest mit insgesamt 1 bis 20 C-Atomen, insbesondere 1 bis 10 C-Atomen,

R² und R³ jeweils unabhängig voneinander Wasserstoff, Amino oder Alkylamino oder Dialkylamino mit jeweils 1 bis 4 C-Atomen im Alkylrest, einen acyclischen oder cyclischen Kohlenwasserstoffrest oder Kohlenwasserstoffoxyrest mit jeweils 1 bis 6 C-Atomen oder einen Heterocyclylrest, Heterocycliloxylrest oder Heterocyclylaminorest mit jeweils 3 bis 6 Ringatomen und 1 bis 3 Heteroringatomen aus der Gruppe N, O und S, wobei jeder der fünf letztgenannten Reste unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C₁-C₄)Alkoxy, (C₁-C₄)Haloalkoxy, (C₁-C₄)Alkylthio, (C₂-C₄)Alkenyl, (C₂-C₄)Alkinyl, (C₂-C₄)Alkenyloxy, (C₂-C₄)Alkinyloxy, Hydroxy, Amino, Acylamino, Mono- und Dialkylamino, Nitro, Carboxy, Cyano, Azido, [(C₁-C₄)Alkoxy]-carbonyl, [(C₁-C₄)Alkyl]-carbonyl, Formyl, Carbamoyl, Mono- und Di-[(C₁-C₄)alkyl]-aminocarbonyl, (C₁-C₄)Alkylsulfinyl, (C₁-C₄)Haloalkylsulfinyl, (C₁-C₄)Alkylsulfonyl, (C₁-C₄)Haloalkylsulfonyl und, im Falle cyclischer Reste, auch (C₁-C₄)Alkyl und (C₁-C₄)Haloalkyl substituiert ist,

- oder einen Acylrest oder
 R^2 und R^3 gemeinsam mit dem Stickstoffatom der Gruppe NR^2R^3 einen heterocyclischen Rest mit 3 bis 6 Ringatomen und 1 bis 2 Heteroringatomen, wobei neben dem N-Atom das gegebenenfalls weitere Heteroringatom aus der Gruppe N, O und S ausgewählt ist und der Rest unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C_1-C_4) Alkyl und Oxo substituiert ist,
- R⁴** Wasserstoff, Amino, Alkylamino oder Dialkylamino mit jeweils 1 bis 6 C-Atomen im Alkylrest, einen acyclischen oder cyclischen Kohlenwasserstoffrest oder Kohlenwasserstoffoxyrest mit jeweils 1 bis 6 C-Atomen oder einen Heterocyclylrest, Heterocyclyloxyrest oder Heterocyclylaminorest mit jeweils 3 bis 6 Ringatomen und 1 bis 3 Heteroringatomen aus der Gruppe N, O und S, wobei jeder der fünf letztgenannten Reste unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C_1-C_4) Alkoxy, (C_1-C_4) Haloalkoxy, (C_1-C_4) Alkylthio, (C_2-C_4) Alkenyl, (C_2-C_4) Alkynyl, (C_2-C_4) Alkenyloxy, (C_2-C_4) Alkynyloxy, Hydroxy, Amino, Acylamino, Mono- und Dialkylamino, Nitro, Carboxy, Cyano, Azido, $[(C_1-C_4)Alkoxy]$ -carbonyl, $[(C_1-C_4)Alkyl]$ -carbonyl, Formyl, Carbamoyl, Mono- und Di- $[(C_1-C_4)alkyl]$ -aminocarbonyl, (C_1-C_4) Alkylsulfinyl, (C_1-C_4) Haloalkylsulfinyl, (C_1-C_4) Alkylsulfonyl, (C_1-C_4) Haloalkylsulfonyl und, im Falle cyclischer Reste, auch (C_1-C_4) Alkyl und (C_1-C_4) Haloalkyl substituiert ist, oder einen Acylrest,
- R⁵** Wasserstoff, Nitro, Cyano, Thiocyanato oder einen Rest der Formel $-B^2-Y^2$, wobei B^2 und Y^2 wie weiter unten definiert sind,
- A-Z** eine divalente Brücke der Formel
- | | |
|------------------------|---|
| $-(CH_2)_a-$, | worin a die ganze Zahl 2, 3 oder 4 ist, |
| $-W^1-(CH_2)_b-W^2-$, | worin b die ganze Zahl 1 oder 2 ist und W^1 , W^2 unabhängig voneinander S oder O bedeuten, |
| $-CH_2CH_2CH_2-W^3-$, | worin W^3 NR, O oder S bedeutet, |
| $-W^4-CH=CH-W^5-$, | worin W^4 , W^5 unabhängig voneinander S oder |

13

$-\text{CH}=\text{CH}-\text{CH}_2-\text{W}^6-$,
 $-\text{CH}_2\text{CH}_2\text{NR}-$,
 $-\text{W}^7-\text{CH}=\text{N}-$,
 $-\text{W}^8\text{CH}_2-\text{N}=\text{N}-$,
 $-\text{CH}=\text{CH}-\text{N}=\text{N}-$,
 $-\text{N}=\text{CH}-\text{CH}=\text{N}-$,
 $-\text{CH}=\text{CH}-\text{CH}_2-$,
 $-\text{CH}=\text{CH}-\text{CH}=\text{CH}-$ oder
 $-\text{CH}=\text{CH}-\text{NR}-$

O bedeuten,

worin W^6 eine Gruppe der Formel S oder O bedeutet, oder

worin W^7 eine Gruppe NR, O oder S bedeutet,

worin W^8 eine Gruppe NR, O oder S bedeutet,

wobei R in den Gruppen NR jeweils H, Methyl oder Ethyl bedeutet,

$(\text{X}')_m$ m Substituenten X' und dabei X' jeweils unabhängig voneinander Halogen, (C_1-C_6) Alkyl, (C_2-C_6) Alkenyl, (C_2-C_6) Alkynyl, (C_1-C_6) Alkoxy, (C_2-C_6) Alkenyloxy, (C_2-C_6) Alkinyloxy, $[(\text{C}_1-\text{C}_4)\text{Alkyl}]$ -carbonyl, $[(\text{C}_1-\text{C}_4)\text{Alkoxy}]$ -carbonyl oder $[(\text{C}_1-\text{C}_4)\text{Alkylthio}]$ -carbonyl, wobei die kohlenwasserstoffhaltigen Teile in den letztgenannten 9 Resten unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C_1-C_4) Alkoxy und (C_1-C_4) Alkylthio substituiert sind, oder die Oxogruppe,

$(\text{X})_n$ n Substituenten X und dabei X jeweils unabhängig voneinander Halogen, Nitro, Cyano, (C_1-C_6) Alkyl, (C_1-C_6) Alkoxy, (C_1-C_4) Alkylcarbonyl, (C_1-C_4) Alkyloxy carbonyl oder (C_1-C_4) Alkylthiocarbonyl, wobei die letztgenannten fünf Reste unsubstituiert oder durch Halogen oder (C_1-C_4) Alkoxy substituiert sind, einen Rest der Formel $-\text{B}^3-\text{Y}^3$, wobei B^3 und Y^3 wie unten definiert sind, oder zwei benachbarte Reste X gemeinsam einen ankondensierten Cyclus mit 4 bis 6 Ringatomen, der carbocyclisch ist oder Heteroringatome aus der Gruppe O, S und N enthält und der unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C_1-C_4) Alkyl und Oxo substituiert ist,

- B^1, B^2, B^3 jeweils unabhängig voneinander eine direkte Bindung oder eine divalente Gruppe der Formel -O-, -S-, -CO-, -O-CO-, -CO-O-, -NR'-, -NR'-CO- oder -CO-NR'-, wobei R' H oder (C₁-C₄)Alkyl ist,
- Y^1, Y^2 jeweils unabhängig voneinander H oder einen acyclischen Kohlenwasserstoffrest mit 1 bis 6 C-Atomen, einen cyclischen Kohlenwasserstoffrest mit 3 bis 6 C-Atomen oder einen heterocyclischen Rest mit 3 bis 9 Ringatomen und 1 bis 3 Heteroringatomen aus der Gruppe N, O und S, wobei jeder der drei letztgenannten Reste unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C₁-C₄)Alkoxy, (C₁-C₄)Haloalkoxy, (C₁-C₄)Alkylthio, (C₂-C₄)Alkenyl, (C₂-C₄)Alkynyl, (C₂-C₄)Alkenyloxy, (C₂-C₄)Alkynyloxy, Hydroxy, Amino, Acylamino, Mono- und Dialkylamino, Nitro, Carboxy, Cyano, Azido, [(C₁-C₄)Alkoxy]-carbonyl, [(C₁-C₄)Alkyl]-carbonyl, Formyl, Carbamoyl, Mono- und Di-[(C₁-C₄)alkyl]-aminocarbonyl, (C₁-C₄)Alkylsulfinyl, (C₁-C₄)Haloalkylsulfinyl, (C₁-C₄)Alkylsulfonyl, (C₁-C₄)Haloalkylsulfonyl und, im Falle cyclischer Reste, auch (C₁-C₄)Alkyl und (C₁-C₄)Haloalkyl substituiert ist,
- Y^3 (C₃-C₆)Cycloalkyl, das unsubstituiert oder durch Reste aus der Gruppe (C₁-C₄)Alkyl und (C₁-C₄)Haloalkyl substituiert ist, oder Phenyl, das unsubstituiert oder durch Reste aus der Gruppe Halogen, (C₁-C₄)Alkyl, (C₁-C₄)Haloalkyl und (C₁-C₄)Alkoxy substituiert ist,
- m 0, 1 oder 2, vorzugsweise 0 oder 1, insbesondere 0,
- n 0, 1, 2, 3 oder 4, vorzugsweise 0, 1 oder 2,
- bedeuten.

Von besonderem Interesse sind weiterhin erfindungsgemäße Verbindungen der Formel (II) und deren Salze, worin

- R^1 (C₁-C₄)Alkyl, das unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C₁-C₄)Alkoxy, (C₁-C₄)Alkylthio und Phenyl, das unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe

Halogen, (C₁-C₄)Alkyl und (C₁-C₄)Haloalkyl, (C₁-C₄)Alkoxy, (C₁-C₄)Haloalkoxy, (C₁-C₄)Alkylthio, Nitro, Cyano, [(C₁-C₂)Alkyl]-carbonyl, Formyl, Carbamoyl, Mono- und Di-[(C₁-C₂)alkyl]-aminocarbonyl, (C₁-C₄)Alkylsulfonyl und (C₃-C₇)Cycloalkyl, das unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste (C₁-C₄)Alkyl substituiert ist,

substituiert ist, oder

(C₃-C₇)Cycloalkyl oder einen heterocyclischen Rest mit 3 bis 6 Ringatomen und 1 oder 2 Heteroringatomen aus der Gruppe N, O und S, wobei der Cycloalkylrest oder der heterocyclische Rest jeweils unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, Nitro, Cyano, Thiocyanato und einen Rest der Formel B¹-Y¹, wobei B¹ und Y¹ wie weiter unten definiert sind, substituiert ist und/oder Substituenten aufweist, die paarweise einen in Spiroform verknüpften Ring aus der Gruppe (C₃-C₇)Cycloalkyl bilden können, der unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen,

(C₁-C₄)Alkyl, (C₁-C₄)Haloalkyl und Oxo substituiert ist,

R² und R³ unabhängig voneinander Wasserstoff, Amino, Formyl, (C₁-C₄)Alkyl, Cyano-(C₁-C₄)alkyl, (C₁-C₄)Alkylamino, Di-[(C₁-C₄)alkyl]-amino, Halo-(C₁-C₄)alkyl, Hydroxy-(C₁-C₄)alkyl, (C₁-C₄)Alkoxy-(C₁-C₄)alkyl, Halo(C₁-C₄)alkoxy-(C₁-C₄)alkyl, (C₂-C₆)Alkenyl, Halo-(C₂-C₆)alkenyl, (C₂-C₆)Alkynyl, Halo-(C₂-C₆)alkynyl, (C₁-C₄)Alkylamino-(C₁-C₄)alkyl, Di-[(C₁-C₄)alkyl]-amino-(C₁-C₄)alkyl, (C₃-C₉)Cycloalkylamino-(C₁-C₄)alkyl, (C₃-C₉)Cycloalkyl, (C₃-C₉)Heterocyclyl-(C₁-C₄)alkyl, wobei die cyclischen Gruppen in den letztgenannten 3 Resten unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste, vorzugsweise bis zu drei Reste, aus der Gruppe (C₁-C₄)Alkyl, Halogen und Cyano substituiert sind, oder Phenyl, Phenoxy, Phenylcarbonyl, Phenoxy-carbonyl, Phenylcarbonyl-(C₁-C₄)alkyl, (C₁-C₄)Alkoxy-carbonyl-(C₁-C₄)alkyl, (C₁-C₄)Alkylamino-carbonyl-(C₁-C₄)alkyl, (C₁-C₄)Alkyl-carbonyl, (C₁-C₄)Alkoxy-carbonyl, Aminocarbonyl, (C₁-C₄)Alkylamino-carbonyl,

Phenoxy-(C₁-C₄)alkyl, Phenyl-(C₁-C₄)alkyl, Heterocyclyl, Heterocyclylamino, Heterocyclylloxy, Heterocyclylthio, oder einen der letztgenannten 17 Reste, der im acyclischen Teil oder, vorzugsweise, im cyclischen Teil durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, Nitro, Cyano, (C₁-C₄)Alkyl, (C₁-C₄)Alkoxy, (C₁-C₄)Alkylthio, (C₁-C₄)Haloalkyl, (C₁-C₄)Haloalkoxy, Formyl, (C₁-C₄)Alkyl-carbonyl, (C₁-C₄)Alkoxy-carbonyl, (C₁-C₄)Alkoxy, substituiert ist, wobei Heterocyclyl in den Resten jeweils 3 bis 9 Ringatome und 1 bis 3 Heteroringatome aus der Gruppe N, O und S enthält, oder R² und R³ gemeinsam mit dem Stickstoffatom der Gruppe NR²R³ einen heterocyclischen Rest mit 3 bis 6 Ringatomen und 1 bis 2 Heteroringatomen, wobei neben dem N-Atom das gegebenenfalls weitere Heteroringatom aus der Gruppe N, O und S ausgewählt ist und der Rest unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C₁-C₄)Alkyl und Oxo substituiert ist,

R⁴ Wasserstoff, Amino, Formyl, (C₁-C₄)Alkyl, Cyano-(C₁-C₄)alkyl, (C₁-C₄)Alkylamino, Di-[(C₁-C₄)alkyl]-amino, Halo-(C₁-C₄)alkyl, Hydroxy-(C₁-C₄)alkyl, (C₁-C₄)Alkoxy-(C₁-C₄)alkyl, Halo(C₁-C₄)alkoxy-(C₁-C₄)alkyl, (C₂-C₆)Alkenyl, Halo-(C₂-C₆)alkenyl, (C₂-C₆)Alkynyl, Halo-(C₂-C₆)alkynyl, (C₁-C₄)Alkylamino-(C₁-C₄)alkyl, Di-[(C₁-C₄)alkyl]-amino-(C₁-C₄)alkyl, (C₃-C₉)Cycloalkylamino-(C₁-C₄)alkyl, (C₃-C₉)Cycloalkyl, (C₃-C₉)Heterocyclyl-(C₁-C₄)alkyl mit 3 bis 9 Ringgliedern, wobei die cyclischen Gruppen in den letztgenannten 3 Resten unsubstituiert oder durch einen oder mehrere, vorzugsweise bis zu drei Reste, aus der Gruppe (C₁-C₄)Alkyl, Halogen und Cyano substituiert sind, oder Phenyl, Phenoxy, Phenylcarbonyl, Phenoxy-carbonyl, Phenylcarbonyl-(C₁-C₄)alkyl, (C₁-C₄)Alkoxy-carbonyl-(C₁-C₄)alkyl, (C₁-C₄)Alkylamino-carbonyl-(C₁-C₄)alkyl, (C₁-C₄)Alkyl-carbonyl, (C₁-C₄)Alkoxy-carbonyl, Aminocarbonyl, (C₁-C₄)Alkylamino-carbonyl, Phenoxy-(C₁-C₄)alkyl, Phenyl-(C₁-C₄)alkyl, Heterocyclyl,

Heterocyclylamino, Heterocyclylxy, Heterocyclylthio, oder einen der letztgenannten 17 Reste, der im acyclischen Teil oder, vorzugsweise, im cyclischen Teil durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, Nitro, Cyano, (C₁-C₄)Alkyl, (C₁-C₄)Alkoxy, (C₁-C₄)Alkylthio, (C₁-C₄)Haloalkyl, (C₁-C₄)Haloalkoxy, Formyl, (C₁-C₄)Alkyl-carbonyl, (C₁-C₄)Alkoxy-carbonyl, (C₁-C₄)Alkoxy, substituiert ist, wobei Heterocyclyl in den Resten jeweils 3 bis 9 Ringatome und 1 bis 3 Heteroringatome aus der Gruppe N, O und S enthält,

R⁵ Wasserstoff, (C₁-C₄)Alkyl, (C₁-C₄)Haloalkyl oder (C₃-C₇)Cycloalkyl,

A-Z eine divalente Brücke der Formel

-CH₂CH₂-, -CH₂CH₂CH₂-, -CH₂CH₂CH₂CH₂-,
 -S-CH₂S-, -S-CH₂-O-, -O-CH₂-O-,
 -S-CH₂CH₂S-, -S-CH₂CH₂-O-, -O-CH₂CH₂-O-,
 -CH₂CH₂CH₂-NR-, -CH₂CH₂CH₂-O-, -CH₂CH₂CH₂-S-,
 -S-CH=CH-S-, O-CH=CH-O-, -O-CH=CH-S-,
 -CH=CH-CH₂-O-, -CH=CH-CH₂-S-,
 -CH₂CH₂NR-,
 -O-CH=N-,
 -S-CH=N-,
 -NR-CH=N-,
 -CH=CH-N=N-,
 -N=CH-CH=N-,
 -CH=CH-CH₂-,
 -CH=CH-CH=CH- oder
 -CH=CH-NR-,

wobei R in den Gruppen NR jeweils H oder Methyl bedeutet,

(X')_m m Substituenten X' und dabei X' jeweils unabhängig voneinander Halogen, (C₁-C₄)Alkyl, (C₂-C₄)Alkenyl, (C₂-C₄)Alkinyl, (C₁-C₄)Alkoxy, (C₂-C₄)Alkenyloxy, (C₂-C₄)Alkinyloxy, [(C₁-C₄)Alkyl]-carbonyl, [(C₁-C₄)Alkoxy]-carbonyl oder [(C₁-C₄)Alkylthio]-carbonyl, wobei die kohlenwasserstoffhaltigen Teile in den letztgenannten 9 Resten

unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen substituiert sind, oder die Oxogruppe,

(X)_n n Substituenten X und dabei X jeweils unabhängig voneinander Halogen, Hydroxy, Amino, Nitro, Formyl, Carboxy, Cyano, Thiocyanato, (C₁-C₄)Alkyl, Cyano-(C₁-C₄)alkyl, (C₁-C₄)Alkoxy, (C₁-C₄)Alkylamino, Di-[(C₁-C₄)alkyl]-amino, Halo-(C₁-C₄)alkyl, Hydroxy-(C₁-C₄)alkyl, (C₁-C₄)Alkoxy-(C₁-C₄)alkyl, Halo(C₁-C₄)alkoxy-(C₁-C₄)alkyl, (C₁-C₄)Alkylthio, Halo-(C₁-C₄)alkylthio, (C₂-C₆)Alkenyl, Halo-(C₂-C₆)Alkenyl, (C₂-C₆)Alkynyl, Halo-(C₂-C₆)alkynyl, (C₁-C₄)Alkylamino-(C₁-C₄)alkyl, Di-[(C₁-C₄)alkyl]-amino-(C₁-C₄)alkyl, (C₃-C₉)Cycloalkylamino-(C₁-C₄)alkyl, (C₃-C₉)Cycloalkyl, Heterocyclyl-(C₁-C₄)alkyl mit 3 bis 9 Ringgliedern, wobei die cyclischen Gruppen in den letztgenannten 3 Resten unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste, vorzugsweise bis zu drei Reste, aus der Gruppe (C₁-C₄)Alkyl, Halogen und Cyano substituiert sind, oder Phenyl, Phenoxy, Phenylcarbonyl, Phenoxy-carbonyl, Phenylcarbonyl-(C₁-C₄)alkyl, (C₁-C₄)Alkoxy-carbonyl-(C₁-C₄)alkyl, (C₁-C₄)Alkylamino-carbonyl-(C₁-C₄)alkyl, (C₁-C₄)Alkyl-carbonyl, (C₁-C₄)Alkoxy-carbonyl, Aminocarbonyl, (C₁-C₄)Alkylamino-carbonyl, Phenoxy-(C₁-C₄)alkyl, Phenyl-(C₁-C₄)alkyl, Heterocyclyl, Heterocyclylamino, Heterocyclyl-oxo, Heterocyclylthio oder einen der letztgenannten 17 Reste, der im acyclischen Teil oder, vorzugsweise, im cyclischen Teil durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, Nitro, Cyano, (C₁-C₄)Alkyl, (C₁-C₄)Alkoxy, (C₁-C₄)Alkylthio, (C₁-C₄)Haloalkyl, (C₁-C₄)Haloalkoxy, Formyl, (C₁-C₄)Alkyl-carbonyl, (C₁-C₄)Alkoxy-carbonyl, (C₁-C₄)Alkoxy, substituiert ist, wobei Heterocyclyl in den Resten jeweils 3 bis 9 Ringatome und 1 bis 3 Heteroringatome aus der Gruppe N, O und S enthält, oder zwei benachbarte Reste X gemeinsam einen ankondensierten Cyclus mit 4 bis 6 Ringatomen, der carbocyclisch ist oder Heteroringatome aus der Gruppe O, S und N enthält und der unsubstituiert oder durch einen oder

mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C₁-C₄)Alkyl und Ox substituiert ist,

- B¹** eine direkte Bindung oder eine divalente Gruppe der Formel -O-, -S-, -CO-, -O-CO-, -CO-O-, -NR'-, -NR'-CO- oder -CO-NR'-, wobei R' H oder (C₁-C₄)Alkyl ist,
- Y¹** H oder einen acyclischen Kohlenwasserstoffrest mit 1 bis 4 C-Atomen, einen cyclischen Kohlenwasserstoffrest mit 3 bis 6 C-Atomen oder einen heterocyclischen Rest mit 3 bis 6 Ringatomen und 1 bis 3 Heteroringatomen aus der Gruppe N, O und S, wobei jeder der drei letztgenannten Reste unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C₁-C₄)Alkoxy, (C₁-C₄)Haloalkoxy, (C₁-C₄)Alkylthio, Hydroxy, Amino, Mono- und Dialkylamino, [(C₁-C₄)Alkoxy]-carbonyl, [(C₁-C₄)Alkyl]-carbonyl, Formyl, Carbamoyl, Mono- und Di-[(C₁-C₄)alkyl]-aminocarbonyl, (C₁-C₄)Alkylsulfinyl, (C₁-C₄)Haloalkylsulfinyl, (C₁-C₄)Alkylsulfonyl, (C₁-C₄)Haloalkylsulfonyl und, im Falle cyclischer Reste, auch (C₁-C₄)Alkyl und (C₁-C₄)Haloalkyl substituiert ist,

bedeuten.

Von besonderem Interesse sind weiterhin erfindungsgemäße Verbindungen der Formel (I) und deren Salze, worin

- R¹** (C₁-C₄)Alkyl, (C₁-C₄)Haloalkyl, Benzyl, [(C₃-C₆)Cycloalkyl]-(C₁-C₂)-alkyl, (C₃-C₆)Cycloalkyl oder einen heterocyclischen Rest mit 3 bis 6 Ringatomen und 1 oder 2 Heteroringatomen aus der Gruppe N und O, vorzugsweise ein Sauerstoffatom als Heteroringatom, wobei der Cycloalkylrest oder der heterocyclische Rest jeweils unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, Nitro, Cyano, Thiocyanato und einen Rest der Formel B¹-Y¹, wobei B¹ und Y¹ wie weiter unten definiert sind, substituiert ist und/oder Substituenten aufweist, die paarweise einen in Spiroform verknüpften Ring aus der Gruppe (C₃-C₇)Cycloalkyl bilden können, der unsubstituiert oder durch

- inen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C₁-C₄)Alkyl, (C₁-C₄)Haloalkyl und Oxo substituiert ist,
- R² und R³ unabhängig voneinander Wasserstoff, Amino, Formyl, (C₁-C₄)Alkyl, (C₁-C₄)Alkoxy-(C₁-C₄)alkyl, (C₃-C₆)Alkenyl, (C₃-C₆)Alkynyl, (C₁-C₄)Alkylamino-(C₁-C₄)alkyl, Di-[(C₁-C₄)alkyl]-amino-(C₁-C₄)alkyl oder Phenyl, Phenyl-(C₁-C₄)alkyl, Phenoxy-carbonyl oder Phenylamino-carbonyl oder einen der letztgenannten vier Reste, der im Phenylteil bis zu dreifach durch Reste aus der Gruppe Halogen, (C₁-C₄)Alkyl, (C₁-C₄)Alkoxy und (C₁-C₄)Alkoxy-carbonyl substituiert ist, oder
- R² und R³ gemeinsam mit dem Stickstoffatom der Gruppe NR²R³ einen heterocyclischen Rest mit 3 bis 6 Ringatomen und 1 bis 2 Heteroringatomen, wobei neben dem N-Atom das gegebenenfalls weitere Heteroringatom aus der Gruppe N und O ausgewählt ist und der Rest unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C₁-C₄)Alkyl und Oxo substituiert ist,
- R⁴ Wasserstoff, Amino, Formyl, (C₁-C₄)Alkyl, Di-[(C₁-C₄)alkyl]-amino, (C₁-C₄)Alkoxy-(C₁-C₄)alkyl, (C₃-C₆)Alkenyl, (C₃-C₆)Alkynyl, (C₁-C₄)Dialkylamino-(C₁-C₄)alkyl, Phenyl, Phenoxy-(C₁-C₄)alkyl, Phenyl-(C₁-C₄)alkyl, Phenoxy-carbonyl, Phenylamino-carbonyl oder einen der letztgenannten fünf Reste, der im Phenylteil einfach bis dreifach durch Reste aus der Gruppe Halogen, (C₁-C₄)Alkyl, (C₁-C₄)Alkoxy und (C₁-C₄)Alkoxy-carbonyl substituiert ist,
- R⁵ Wasserstoff, (C₁-C₄)Alkyl, (C₁-C₄)Haloalkyl oder (C₃-C₇)Cycloalkyl,
- A-Z eine divalente Brücke der Formel
- CH₂CH₂-, -CH₂CH₂CH₂-, -CH₂CH₂CH₂CH₂-,
 - S-CH₂CH₂S-, -S-CH₂CH₂-O-, -O-CH₂CH₂-O-,
 - CH₂CH₂CH₂-NR-, -CH₂CH₂CH₂-O-, -CH₂CH₂CH₂-S-,
 - S-CH=CH-S-, O-CH=CH-O-,
 - CH=CH-CH₂-O-, -O-CH=CH-S-,
 - CH₂CH₂NR-,
 - O-CH=N-,

$-S-CH=N-$,
 $-NR-CH=N-$,
 $-CH=CH-N=N-$,
 $-N=CH-CH=N-$,
 $-CH=CH-CH_2-$,
 $-CH=CH-CH=CH-$ oder
 $-CH=CH-NR$,

wobei R in den Gruppen NR jeweils H oder Methyl bedeutet,

- $(X')_m$ m Substituenten X' und dabei X' jeweils unabhängig voneinander Halogen, (C_1-C_4) Alkyl oder (C_1-C_4) Alkoxy,
 $(X)_n$ n Substituenten X und dabei X jeweils unabhängig voneinander Halogen, Hydroxy, (C_1-C_4) Alkyl oder (C_1-C_4) Alkoxy
 B^1 eine direkte Bindung oder eine divalente Gruppe der Formel $-O-$, $-S-$ oder $-O-CO-$,
 Y^1 H, (C_1-C_4) Alkyl, (C_3-C_6) Cycloalkyl oder Phenyl, das unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C_1-C_4) Alkyl, (C_1-C_4) Haloalkyl, (C_1-C_4) Alkoxy, (C_1-C_4) Haloalkoxy, Mono- und Dialkylamino substituiert ist,
- bedeuten.

Bevorzugte erfindungsgemäße Verbindungen der Formel (I) und deren Salze sind solche, worin

- R^1 (C_1-C_4) Alkyl, (C_1-C_4) Haloalkyl oder $[(C_3-C_6)\text{-cycloalkyl}]\text{-methyl}$,
 vorzugsweise $-CH_3$, $-CH_2F$, $-CHF_2$, $-CF_3$, $-CH_2Cl$, $-CHCl_2$, $-CCl_3$, $-CH_2Br$,
 $-CHBr_2$, $-CH_2CH_3$, $-CH_2CH_2F$, $-CF_2CHF_2$, $-CH_2CH_2Cl$, $-CH_2CH_2Br$,
 $-CH(CH_3)_2$, $-CF(CH_3)_2$, $-C(CH_3)_2Cl$ oder Cyclopropylmethyl,
 R^2 und R^3 unabhängig voneinander Wasserstoff, Formyl oder (C_1-C_4) Alkyl
 oder
 R^2 und R^3 gemeinsam mit dem Stickstoffatom der Gruppe NR^2R^3 einen heterocyclischen Rest mit 4 bis 6 Ringatomen und 1 bis 2 Heteroringatomen, wobei neben dem N-Atom das gegebenenfalls weitere

Heteroringatom aus der Gruppe N und O ausgewählt ist,

R^4 Wasserstoff oder (C_1-C_4) Alkyl,

R^5 H, (C_1-C_4) Alkyl oder (C_1-C_4) Haloalkyl, vorzugsweise H, CH_3 , C_2H_5 , n- oder i- C_3H_7 , n-Butyl oder CF_3 , insbesondere CH_3 oder C_2H_5 ,

A-Z eine divalente Brücke der Formel

$-CH_2CH_2-$, $-CH_2CH_2CH_2-$, $-CH_2CH_2CH_2CH_2-$,

$-S-CH_2CH_2S-$, $-O-CH_2CH_2-O-$,

$-CH_2CH_2CH_2-NR-$, $-CH_2CH_2CH_2-O-$, $-CH_2CH_2CH_2-S-$,

$-CH_2CH_2NR-$,

$-N=CH-O-$, $-N=CH-S-$, $-N=CH-NR$,

$-N=CH-CH=N-$,

$-CH=CH-CH_2-$,

$-CH=CH-CH=CH-$ oder

$-CH=CH-NR$,

wobei R in den Gruppen NR jeweils H oder Methyl, vorzugsweise H, bedeutet,

$(X')_m$ m Substituenten X' und dabei X' jeweils unabhängig voneinander Halogen oder (C_1-C_4) Alkyl,

$(X)_n$ n Substituenten X und dabei X jeweils unabhängig voneinander Halogen, Hydroxy, (C_1-C_4) Alkyl oder (C_1-C_4) Alkoxy

bedeuten.

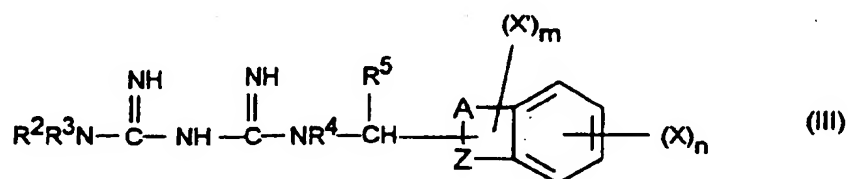
Bevorzugt sind auch erfindungsgemäße Verbindungen der Formel (I) und deren Salze, die ein oder mehrere der Merkmale aus den obengenannten bevorzugten Verbindungen enthalten.

Gegenstand der vorliegenden Erfindung sind auch Verfahren zur Herstellung der Verbindungen der allgemeinen Formel (I) oder deren Salze, dadurch gekennzeichnet, daß man

a) eine Verbindung der Formel (II),

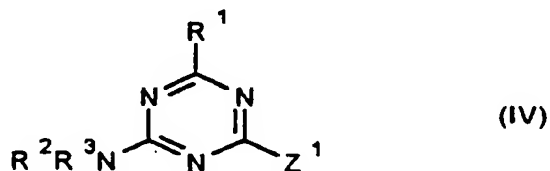


worin Fu eine funktionelle Gruppe aus der Gruppe Carbonsäureester, Carbonsäureorthoester, Carbonsäurechlorid, Carbonsäureamid, Carbonsäureanhydrid und Trichlormethyl bedeutet, mit einem Biguanidid der Formel (III) oder einem Säureadditionssalz hiervon

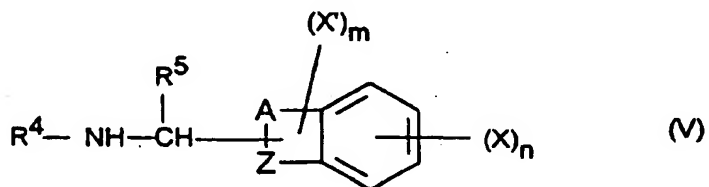


umsetzt oder

b) eine Verbindung der Formel (IV),



worin Z^1 einen austauschfähigen Rest oder eine Abgangsgruppe, z.B. Chlor, Trichlormethyl, (C_1-C_4) Alkylsulfonyl und unsubstituiertes oder substituiertes Phenyl- (C_1-C_4) alkylsulfonyl oder (C_1-C_4) Alkylphenylsulfonyl, bedeutet, mit einem geeigneten Amin der Formel (V) oder einem Säureadditionssalz hiervon



umsetzt,

wobei in den Formeln (II), (III), (IV) und (V) die Rest R^1 , R^2 , R^3 , R^4 , R^5 , A, X', X, m und n wie in Formel (I) definiert sind.

Die Umsetzung der Verbindungen der Formel (II) und (III) erfolgt vorzugsweise basenkatalysiert in einem inerten organischen Lösungsmittel, wie z.B. Tetrahydrofuran (THF), Dioxan, Acetonitril, Dimethylformamid (DMF), Methanol und Ethanol, bei Temperaturen zwischen -10°C und dem Siedepunkt des Lösungsmittel, vorzugsweise bei 20°C bis 60°C ; falls Säureadditionssalze der Formel (III) verwendet werden, setzt man diese in der Regel mit Hilfe einer Base in situ frei. Als Basen bzw. basische Katalysatoren eignen sich Alkalihydroxide, Alkalihydride, Alkalicarbonate, Alkalialkoholate, Erdalkalihydroxide, Erdalkalihydride, Erdalkalicarbonate oder organische Basen wie Triethylamin oder 1,8-Diazabicyclo[5.4.0]undec-7-en (DBU). Die jeweilige Base wird dabei beispielsweise im Bereich von 0,1 bis 3 Moläquivalenten bezogen auf die Verbindung der Formel (III) eingesetzt. Die Verbindung der Formel (II) kann im Verhältnis zur Verbindung der Formel (III) beispielsweise äquimolar oder mit bis zu 2 Moläquivalenten Überschuß eingesetzt werden. Grundsätzlich sind die entsprechenden Verfahren in der Literatur bekannt (vergleiche: Comprehensive Heterocyclic Chemistry, A.R. Katritzky, C.W. Rees, Pergamon Press, Oxford, New York, 1984, Vol.3; Part 2B; ISBN 0-08-030703-5, S.290).

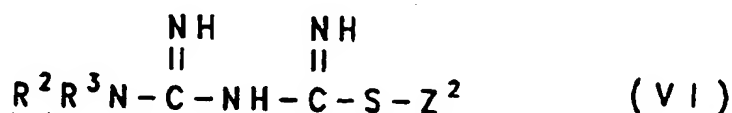
Die Umsetzung der Verbindungen der Formel (IV) und (V) erfolgt vorzugsweise basenkatalysiert in einem inerten organischen Lösungsmittel, wie z.B. THF, Dioxan, Acetonitril, DMF, Methanol und Ethanol, bei Temperaturen zwischen -10°C und dem Siedepunkt des jeweiligen Lösungsmittels oder Lösungsmittelgemisches, vorzugsweise bei 20°C bis 60°C , wobei die Verbindung (V), falls als Säureadditionssalz eingesetzt, gegebenenfalls in situ mit einer Base freigesetzt wird. Als Basen bzw. basische Katalysatoren eignen sich Alkalihydroxide, Alkalihydride, Alkalicarbonate, Alkalialkoholate, Erdalkalihydroxide, Erdalkalihydride, Erdalkalicarbonate oder organische Basen wie Triethylamin oder 1,8-Diazabicyclo[5.4.0]undec-7-en (DBU). Die jeweilige

Base wird dabei in der Regel im B reich von 1 bis 3 Moläquivalenten bezogen auf die Verbindung der Formel (IV) eingesetzt, die Verbindung der Formel (IV) kann beispielsweise äquimolar zur Verbindung der Formel (V) oder mit bis zu 2 Moläquivalenten Überschuß eingesetzt werden. Grundsätzlich sind die entsprechenden Verfahren aus der Literatur bekannt (vgl. Comprehensive Heterocyclic Chemistry, A.R. Katritzky, C.W. Rees, Pergamon Press, Oxford, New York, 1984, Vol.3; Part 2B; ISBN 0-08-030703-5, S. 482).

Die Edukte der Formeln (II), (III), (IV) und (V) sind entweder kommerziell erhältlich oder können nach oder analog literaturbekannten Verfahren hergestellt werden. Die Verbindungen können beispielsweise auch nach einem der nachfolgend beschriebenen Verfahren hergestellt werden.

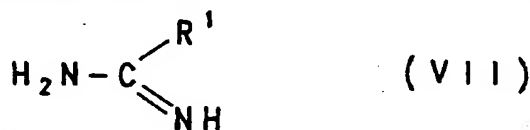
Die Verbindung der Formel (IV), oder eine direkte Vorstufe davon, läßt sich beispielsweise wie folgt herstellen:

1. Durch Reaktion einer Verbindung der Formel (II) mit einem Amidino-thioharnstoff-Derivat der Formel (VI),

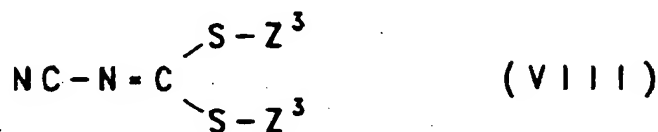


worin Z^2 (C_1 - C_4)-Alkyl oder Phenyl-(C_1 - C_4)-alkyl bedeutet und R^2 und R^3 wie in Formel (I) definiert sind, werden Verbindungen der Formel (IV) erhalten, in denen $\text{Z}^1 = -\text{SZ}^2$ bedeutet.

2. Durch Umsetzung eines Amidins der Formel (VII) oder eines Säureadditionssalzes davon,



worin R^1 wie in Formel (I) definiert ist,
mit einem N-Cyanodithioiminocarbonat der Formel (VIII),

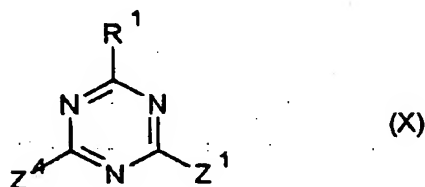


worin Z^3 (C_1 - C_4)-Alkyl oder Phenyl-(C_1 - C_4)-alkyl bedeutet, werden
Verbindungen der Formel (IV) erhalten, worin $Z^1 = -\text{S}-\text{Z}^3$ bedeutet.

3. Durch Umsetzung eines Alkali-dicyanamids mit einem Carbonsäurederivat der genannten Formel (II) werden Verbindungen der Formel (IV) erhalten, worin $Z^1 = \text{NH}_2$ bedeutet,
4. Durch Umsetzung von Trichloracetonitril mit einem Nitril der Formel (IX),



worin R^1 wie in Formel (I) definiert ist, werden zunächst Verbindungen der Formel (X),



worin Z^1 und Z^4 jeweils CCl_3 bedeuten, erhalten, welche durch
nachfolgende Umsetzung mit Verbindungen der Formel HNR^2R^3 (R^2 und R^3 wie in Formel (I)), zu Verbindungen der Formel (IV), worin $Z^1 = \text{CCl}_3$ bedeutet, führen.

Die Umsetzung der Carbonsäurederivate der Formel (II) mit den
Amidinothioharnstoff-Derivaten der Formel (VI) erfolgt vorzugsweise

basenkatalysiert in einem organischen Lösungsmittel, wie z.B. Aceton, THF, Dioxan, Acetonitril, DMF, Methanol, Ethanol, bei Temperaturen von -10°C bis zum Siedepunkt des Lösungsmittel, vorzugsweise bei 0°C bis 20°C. Die Umsetzung kann aber auch in Wasser oder in wässrigen Lösungsmittelgemischen mit einem oder mehreren der obengenannten organischen Lösungsmitteln erfolgen. Falls (VI) als Säureadditionssalz eingesetzt wird, kann es gegebenenfalls in situ mit einer Base freigesetzt werden. Als Basen bzw. basische Katalysatoren eignen sich Alkalihydroxide, Alkalihydride, Alkalicarbonate, Alkalialkoholate, Erdalkalihydroxide, Erdalkalihydride, Erdalkalicarbonate oder organische Basen wie Triethylamin oder 1,8-Diazabicyclo[5.4.0]undec-7-en (DBU). Die jeweilige Base wird dabei z.B. im Bereich von 1 bis 3 Moläquivalenten bezogen auf die Verbindung der Formel (VI) eingesetzt. Verbindungen der Formel (II) und (VI) können beispielsweise äquimolar oder mit bis zu 2 Moläquivalenten Überschuß an Verbindung der Formel (II) eingesetzt werden. Grundsätzlich sind die entsprechenden Verfahren literaturbekannt (vergl.: H. Eilingsfeld, H. Scheuermann, Chem. Ber.; 1967, 100, 1874).

Die Umsetzung der Amidine der Formel (VII) mit den N-Cyanodithioiminocarbonaten der Formel (VIII) erfolgt vorzugsweise basenkatalysiert in einem inerten organischen Lösungsmittel, wie z.B. Acetonitril, DMF, Dimethylacetamid (DMA), N-Methylpyrrolidon (NMP), Methanol und Ethanol, bei Temperaturen von -10°C bis zum Siedepunkt des Lösungsmittels, vorzugsweise bei 20°C bis 80°C. Falls (VII) als Säureadditionssalz eingesetzt wird, kann es gegebenenfalls in situ mit einer Base freigesetzt werden. Als Basen bzw. basische Katalysatoren eignen sich Alkalihydroxide, Alkalihydride, Alkalicarbonate, Alkalialkoholate, Erdalkalihydroxide, Erdalkalihydride, Erdalkalicarbonate oder organische Basen wie Triethylamin oder 1,8-Diazabicyclo[5.4.0]undec-7-en (DBU). Die jeweilige Base wird dabei z. B. in Bereich von 1 bis 3 Moläquivalenten bezogen auf die Verbindung der Formel (VIII) eingesetzt, Verbindungen der Formel (VII) und

(VIII) können in der Regel äquimolar oder mit 2 Moläquivalenten Überschuß an Verbindung der Formel (II) eingesetzt werden. Grundsätzlich sind die entsprechenden Verfahren literaturbekannt (vergl.: T.A. Riley, W.J. Henney, N.K. Dalley, B.E. Wilson, R.K. Robins; J. Heterocyclic Chem.; 1986, 23 (6), 1706-1714).

Die Herstellung von Zwischenprodukten der Formel (X) mit $Z^1 = \text{Chlor}$ kann durch Reaktion von Alkali-dicyanamid mit einem Carbonsäurederivat der Formel (II), wobei dann Fu bevorzugt die funktionelle Gruppe Carbonsäurechlorid oder Carbonsäureamid bedeutet, erfolgen. Die Umsetzung der Reaktionskomponenten erfolgt beispielsweise säurekatalysiert in einem inerten organischen Lösungsmittel wie z.B. Toluol, Chlorbenzol, chlorierten Kohlenwasserstoffen bei Temperaturen zwischen -10°C und dem Siedepunkt des Lösungsmittels, vorzugsweise bei 20°C bis 80°C , wobei die entstehenden Intermediate in situ mit einem geeigneten Chlorierungsreagenz wie beispielsweise Phosphoroxychlorid chloriert werden können. Geeignete Säuren sind z.B. Halogenwasserstoffsäuren, wie HCl, oder auch Lewis-Säuren, wie z.B. AlCl_3 oder BF_3 (vergl. US-A-5095113, DuPont).

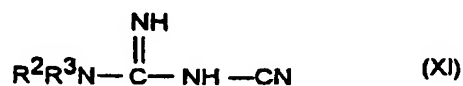
Die Herstellung von Zwischenprodukten der Formel (X) mit $Z^1, Z^4 = \text{Trihalogenmethyl}$ kann durch Reaktion der entsprechenden Trihalogenessigsäurenitrile mit einem Carbonsäurenitril der Formel (IX) erfolgen. Die Umsetzung der Reaktionskomponenten erfolgt beispielsweise säurekatalysiert in einem inerten organischen Lösungsmittel wie z.B. Toluol, Chlorbenzol, chlorierten Kohlenwasserstoffen bei Temperaturen zwischen -40°C und dem Siedepunkt des Lösungsmittels, vorzugsweise bei -10°C bis 30°C . Geeignete Säuren sind z.B. Halogenwasserstoffsäuren wie HCl oder auch Lewis-Säuren wie z.B. AlCl_3 oder BF_3 (vgl. EP-A-130939, Ciba Geigy).

Zwischenprodukte der Formel (IV), worin $Z^1 = (\text{C}_1\text{-C}_4)\text{Alkylmercapto}$ oder unsubstituiertes Phenyl- $(\text{C}_1\text{-C}_4)\text{-alkylmercapto}$ ist, können in einem inerten

organischen Lösungsmittel wie z.B. Toluol, Chlorbenzol, chlorierten Kohlenwasserstoffen oder anderen bei Temperaturen zwischen -40 °C und dem Siedepunkt des Lösungsmittel, vorzugsweise bei 20 °C bis 80 °C, mit einem geeigneten Chlorierungsreagenz wie z.B. elementarem Chlor oder Phosphoroxychlorid zu reaktionsfähigeren Chlortriazinen der Formel (IV), worin $Z^1 = \text{Cl}$ ist, überführt werden (vgl. J.K. Chakrabarti, D.E. Tupper; Tetrahedron 1975, 31(16), 1879-1882).

Zwischenprodukte der Formel (IV), wobei $Z^1 = (\text{C}_1\text{-C}_4)\text{Alkylmercapto}$ oder unsubstituiertes oder substituiertes Phenyl- $(\text{C}_1\text{-C}_4)\text{-alkylmercapto}$ oder $(\text{C}_1\text{-C}_4)\text{Alkyl-phenylthio}$ ist, können in einem geeigneten Lösungsmittel wie z.B. chlorierten Kohlenwasserstoffen, Essigsäure, Wasser, Alkoholen, Aceton oder Mischungen hiervon bei Temperaturen zwischen 0°C und dem Siedepunkt des Lösungsmittels, vorzugsweise von 20°C bis 80°C, mit einem geeigneten Oxidationsreagenz wie z.B. m-Chlorperbenzoesäure, Wasserstoffperoxid, Kaliumperoxomonosulfat oxidiert werden (vergl.: T.A. Riley, W.J. Henney, N.K. Dalley, B.E. Wilson, R.K. Robins; J. Heterocyclic Chem.; 1986, 23 (6), 1706-1714).

Die Biguanidide der Formel (III) können hergestellt werden, indem man Cyanoguanidine der Formel (XI)

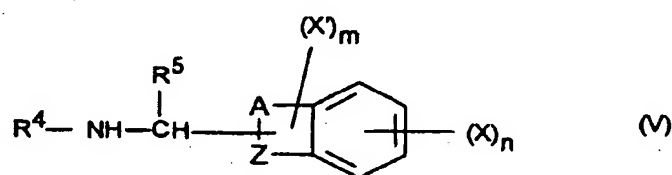


worin R^2 und R^3 wie in Formel (I) definiert sind, mit Aminen der genannten Formel (V), vorzugsweise in Form der Hydrohalogenide oder anderer Säureadditionssalze, umsetzt;

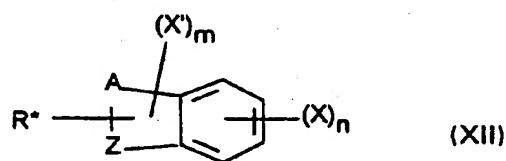
die Amine werden auch in dem alternativen Verfahren b) zur Herstellung von Verbindungen (I) eingesetzt.

Die Umsetzung der Verbindungen (III) und (V) erfolgt in der Regel, indem man die Verbindung (III) mit dem Hydrochlorid des Amins der Formel (V) in Gegenwart eines inerten organischen, vorzugsweise höher siedenden Lösungsmittels bei Temperaturen von 50°C bis zur Siedetemperatur des Lösungsmittels, insbesondere 60 bis 150°C reagieren läßt. Als Lösungsmittel kommen die bereits erwähnten organischen Lösungsmittel in Frage, beispielsweise THF oder Dichlorbenzol.

Zur Herstellung von Zwischenprodukten der Formel (V)



eignen sich Verfahren, wobei man Verbindungen der Formel (XII)



in denen A, X, X', Z, m und n wie in Formel (V) definiert sind und

1. in denen R* eine Gruppe der Formel $\text{R}^5 - \text{CH} - \text{L}$ bedeutet,

worin L eine Abgangsgruppe ist, beispielsweise Halogen wie Chlor, Brom oder Iod oder die Mesylgruppe ist, mit Ammoniak oder einem Amin $\text{R}^4 - \text{NH}_2$ umgesetzt oder

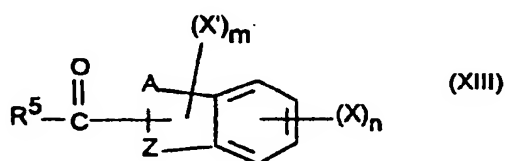
2. in denen R* eine Gruppe der Formel $\text{R}^5 - \text{CO} -$ bedeutet,

mit Ammoniak in Gegenwart einer Wasserstoffquelle, z.B. eines Reduktionsmittels wie Raney Nickel, reduktiv aminiert und im Falle R^4 ungleich Wasserstoff entsprechend derivatisiert,

3. in denen R^5 eine Gruppe der Formel $R^5-C(=NOH)-$ bedeutet, mit Wasserstoff in Gegenwart eines Katalysators reduziert und die erhaltene Verbindung (V) im Falle R^4 ungleich Wasserstoff entsprechend derivatisiert,

wobei in den Formeln der Varianten 1 bis 3 R^5 jeweils wie in Formel (V) definiert ist.

Zur Herstellung von Zwischenprodukten der Formel (V) und deren Säureadditionssalzen eignet sich beispielsweise ein Verfahren, wobei Ketone der Formel (XIII),



in denen

R^5 , A, X, X' , Z, m und n wie in Formel (V) definiert sind, entweder direkt nach der genannten Variante 2 reduktiv aminiert werden oder zunächst mit Hydroxylaminhydrochlorid unter Standardbedingungen, z.B. in wäßriger alkoholischer Lösung in Gegenwart einer Base, zum entsprechenden Oxim umgesetzt werden, das dann nach der genannten Variante 3 zur Verbindung der Formel V, $R^4 = H$ reduziert wird. Erforderlichenfalls wird zu anderen Verbindungen $R^4 = H$ derivatisiert.

Die Reaktionen der Varianten 1 bis 3 sind im Prinzip bekannt und in EP-0492615 am Beispiel der Herstellung von Phenoxyalkylaminen in analoger Weise beschrieben. Die dort gewählten Reaktionsbedingungen können in der

Reg I auch bei der Herstellung von Verbindungen (V) aus Verbindungen der Formel (XIII) angewendet werden. Die Ketone der Formel (XIII) sind literaturbekannt (vgl. JACS 97, 347 (1975); Bull. Soc. Chim. Fr. 1973 (Pt.2), 1285; Gazz. Chim. Ital. 107, 271 (1977); Heterocycles 26, 645 (1987)) oder können analog den literaturbekannten Verfahren hergestellt werden.

Zur Herstellung der Säureadditionssalze der Verbindungen der Formel (I) kommen folgende Säuren in Frage: Halogenwasserstoffsäuren wie Chlorwasserstoffsäure oder Bromwasserstoffsäure, weiterhin Phosphorsäure, Salpetersäure, Schwefelsäure, mono- oder bifunktionelle Carbonsäuren und Hydroxycarbonsäuren wie Essigsäure, Maleinsäure, Bernsteinsäure, Fumarsäure, Weinsäure, Citronensäure, Salicylsäure, Sorbinsäure oder Milchsäure, sowie Sulfonsäuren wie p-Toluolsulfonsäure oder 1,5-Naphtalindisulfonsäure. Die Säureadditionsverbindungen der Formel (I) können in einfacher Weise nach den üblichen Salzbildungsmethoden, z.B. durch Lösen einer Verbindung der Formel (I) in einem geeigneten organischen Lösungsmittel wie z.B. Methanol, Aceton, Methylenchlorid oder Benzin und Hinzufügen der Säure bei Temperaturen von 0 bis 100 °C erhalten werden und in bekannter Weise, z.B. durch Abfiltrieren, isoliert und gegebenenfalls durch Waschen mit einem inerten organischen Lösemittel gereinigt werden.

Die Basenadditionssalze der Verbindungen der Formel (I) werden vorzugsweise in inerten polaren Lösungsmitteln wie z.B. Wasser, Methanol oder Aceton bei Temperaturen von 0 bis 100°C hergestellt. Geeignete Basen zur Herstellung der erfindungsgemäßen Salze sind beispielsweise Alkalicarbonate, wie Kaliumcarbonat, Alkali- und Erdalkalihydroxide, z.B. NaOH oder KOH, Alkali- und Erdalkalihydride, z.B. NaH, Alkali- und Erdalkaloholate, z.B. Natriummethanolat, Kalium-tert. Butylat, oder Ammoniak oder Ethanolamin.

Mit den in den vorstehenden Verfahrensvarianten bezeichneten "inerten Lösungsmitteln" sind jeweils Lösungsmittel gemeint, die unter den jeweiligen

Reaktionsbedingungen inert sind, jedoch nicht unter beliebigen Reaktionsbedingungen inert sein müssen.

Die erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) und deren Salze, im folgenden zusammen als (erfindungsgemäße) Verbindungen der Formel (I) bezeichnet, weisen eine ausgezeichnete herbizide Wirksamkeit gegen ein breites Spektrum wirtschaftlich wichtiger mono- und dikotyler Schadpflanzen auf. Auch schwer bekämpfbare perennierende Unkräuter, die aus Rhizomen, Wurzelstöcken oder anderen Dauerorganen austreiben, werden durch die Wirkstoffe gut erfaßt. Dabei ist es gleichgültig, ob die Substanzen im Vorsaats-, Vorauf- oder Nachaufverfahren ausgebracht werden.

Im einzelnen seien beispielhaft einige Vertreter der mono- und dikotylen Unkrautflora genannt, die durch die erfindungsgemäßen Verbindungen kontrolliert werden können, ohne daß durch die Nennung eine Beschränkung auf bestimmte Arten erfolgen soll.

Auf der Seite der monokotylen Unkrautarten werden z.B. Avena, Lolium, Alopecurus, Phalaris, Echinochloa, Digitaria, Setaria sowie Cyperusarten aus der annuellen Gruppe und auf seiten der perennierenden Spezies Agropyron, Cynodon, Imperata sowie Sorghum und auch ausdauernde Cyperusarten gut erfaßt.

Bei dikotylen Unkrautarten erstreckt sich das Wirkungsspektrum auf Arten wie z.B. Galium, Viola, Veronica, Lamium, Stellaria, Amaranthus, Sinapis, Ipomoea, Matricaria, Abutilon und Sida auf der annuellen Seite sowie Convolvulus, Cirsium, Rumex und Artemisia bei den perennierenden Unkräutern.

Unter den spezifischen Kulturbedingungen im Reis vorkommende Unkräuter wie z.B. Sagittaria, Alisma, Eleocharis, Scirpus und Cyperus werden von den erfindungsgemäßen Wirkstoffen ebenfalls hervorragend bekämpft.

Werden die erfindungsgemäßen Verbindungen vor dem Keimen auf die

Erdoberfläche appliziert, so wird entweder das Auflaufen der Unkrautkeimlinge vollständig verhindert oder die Unkräuter wachsen bis zum Keimblattstadium heran, stellen jedoch dann ihr Wachstum ein und sterben schließlich nach Ablauf von drei bis vier Wochen vollkommen ab.

Bei Applikation der Wirkstoffe auf die grünen Pflanzenteile im Nachauflaufverfahren tritt ebenfalls sehr rasch nach der Behandlung ein drastischer Wachstumsstop ein und die Unkrautpflanzen bleiben in dem zum Applikationszeitpunkt vorhandenen Wachstumsstadium stehen oder sterben nach einer gewissen Zeit ganz ab, so daß auf diese Weise eine für die Kulturpflanzen schädliche Unkrautkonkurrenz sehr früh und nachhaltig beseitigt wird.

Obgleich die erfindungsgemäßen Verbindungen eine ausgezeichnete herbizide Aktivität gegenüber mono- und dikotylen Unkräutern aufweisen, werden Kulturpflanzen wirtschaftlich bedeutender Kulturen wie z.B. Weizen, Gerste, Roggen, Reis, Mais, Zuckerrübe, Baumwolle und Soja nur unwesentlich oder gar nicht geschädigt. Die vorliegenden Verbindungen eignen sich aus diesen Gründen sehr gut zur selektiven Bekämpfung von unerwünschtem Pflanzenwuchs in landwirtschaftlichen Nutzpflanzungen.

Darüberhinaus weisen die erfindungsgemäßen Substanzen hervorragende wachstumsregulatorische Eigenschaften bei Kulturpflanzen auf. Sie greifen regulierend in den pflanzeigenen Stoffwechsel ein und können damit zur gezielten Beeinflussung von Pflanzeninhaltsstoffen und zur Ernteerleichterung wie z.B. durch Auslösen von Desikkation und Wuchsstauchung eingesetzt werden. Desweiteren eignen sie sich auch zur generellen Steuerung und Hemmung von unerwünschtem vegetativen Wachstum, ohne dabei die Pflanzen abzutöten. Eine Hemmung des vegetativen Wachstums spielt bei vielen mono- und dikotylen Kulturen eine große Rolle, da das Lagern hierdurch verringert oder völlig verhindert werden kann.

Die erfindungsgemäßen Verbindungen können in Form von Spritzpulvern, emulgierbaren Konzentraten, versprühbaren Lösungen, Stäubemitteln oder Granulaten in den üblichen Zubereitungen angewendet werden. Gegenstand der Erfindung sind deshalb auch herbizide und pflanzenwachstumsregulierende Mittel, die Verbindungen der Formel (I) enthalten.

Die Verbindungen der Formel (I) können auf verschiedene Art formuliert werden, je nachdem welche biologischen und/oder chemisch-physikalischen Parameter vorgegeben sind. Als Formulierungsmöglichkeiten kommen beispielsweise in Frage: Spritzpulver (WP), wasserlösliche Pulver (SP), wasserlösliche Konzentrate, emulgierbare Konzentrate (EC), Emulsionen (EW), wie Öl-in-Wasser- und Wasser-in-Öl-Emulsionen, versprühbare Lösungen, Suspensionskonzentrate (SC), Dispersionen auf Öl- oder Wasserbasis, ölmischbare Lösungen, Kapselsuspensionen (CS), Stäubemittel (DP), Beizmittel, Granulate für die Streu- und Bodenapplikation, Granulate (GR) in Form von Mikro-, Sprüh-, Aufzugs- und Adsorptionsgranulaten, wasserdispergierbare Granulate (WG), wasserlösliche Granulate (SG), ULV-Formulierungen, Mikro kapseln und Wachse.

Diese einzelnen Formulierungstypen sind im Prinzip bekannt und werden beispielsweise beschrieben in: Winnacker-Küchler, "Chemische Technologie", Band 7, C. Hauser Verlag München, 4. Aufl. 1986, Wade van Valkenburg, "Pesticide Formulations", Marcel Dekker, N.Y., 1973; K. Martens, "Spray Drying Handbook", 3rd Ed. 1979, G. Goodwin Ltd. London.

Die notwendigen Formulierungshilfsmittel wie Inertmaterialien, Tenside, Lösungsmittel und weitere Zusatzstoffe sind ebenfalls bekannt und werden beispielsweise beschrieben in: Watkins, "Handbook of Insecticide Dust Diluents and Carriers", 2nd Ed., Darland Books, Caldwell N.J., H.v. Olphen, "Introduction to Clay Colloid Chemistry"; 2nd Ed., J. Wiley & Sons, N.Y.; C. Marsden, "Solvents Guide"; 2nd Ed., Interscience, N.Y. 1963; McCutche n's

"Detergents and Emulsifiers Annual", MC Publ. Corp., Ridgewood N.J.; Sisley and Wood, "Encyclopedia of Surface Active Agents", Chem. Publ. Co. Inc., N.Y. 1964; Schönfeldt, "Grenzflächenaktive Äthylenoxidaddukte", Wiss. Verlagsgesell., Stuttgart 1976; Winnacker-Küchler, "Chemische Technologie", Band 7, C. Hauser Verlag München, 4. Aufl. 1986.

Auf der Basis dieser Formulierungen lassen sich auch Kombinationen mit anderen pestizid wirksamen Stoffen, wie z.B. Insektiziden, Akariziden, Herbiziden, Fungiziden, sowie mit Safenern, Düngemitteln und/oder Wachstumsregulatoren herstellen, z.B. in Form einer Fertigformulierung oder als Tankmix.

Spritzpulver sind in Wasser gleichmäßig dispergierbare Präparate, die neben dem Wirkstoff außer einem Verdünnungs- oder Inertstoff noch Tenside ionischer und/oder nichtionischer Art (Netzmittel, Dispergiermittel), z.B. polyoxyethylierte Alkylphenole, polyoxethylierte Fettalkohole, polyoxethylierte Fettamine, Fettalkoholpolyglykoethersulfate, Alkansulfonate, Alkylbenzolsulfonate, ligninsulfonsaures Natrium, 2,2'-dinaphthylmethan-6,6'-disulfonsaures Natrium, dibutyl-naphthalin-sulfonsaures Natrium oder auch oleoyimethyltaurinsaures Natrium enthalten. Zur Herstellung der Spritzpulver werden die herbiziden Wirkstoffe beispielsweise in üblichen Apparaturen wie Hammermühlen, Gebläsemühlen und Luftstrahlmühlen feingemahlen und gleichzeitig oder anschließend mit den Formulierungshilfsmitteln vermischt.

Emulgierbare Konzentrate werden durch Auflösen des Wirkstoffes in einem organischen Lösungsmittel z.B. Butanol, Cyclohexanon, Dimethylformamid, Xylol oder auch höhersiedenden Aromaten oder Kohlenwasserstoffen oder Mischungen der organischen Lösungsmittel unter Zusatz von einem oder mehreren Tensiden ionischer und/oder nichtionischer Art (Emulgatoren) hergestellt. Als Emulgatoren können beispielsweise verwendet werden: Alkylarylsulfonsaure Calcium-Salze wie

Ca-dodecylbenzolsulfonat oder nichtionische Emulgatoren wie Fettsäurepolyglykolester, Alkylarylpolyglykolether, Fettalkoholpolyglykolether, Propylenoxid-Ethylenoxid-Kondensationsprodukte, Alkylpolyether, Sorbitanester wie z.B. Sorbitanfettsäureester oder Polyoxethylensorbitanester wie z.B. Polyoxyethylensorbitanfettsäureester.

Stäubemittel erhält man durch Vermahlen des Wirkstoffes mit fein verteilten festen Stoffen, z.B. Talkum, natürlichen Tonen, wie Kaolin, Bentonit und Pyrophyllit, oder Diatomeenerde.

Suspensionskonzentrate können auf Wasser- oder Ölbasis sein. Sie können beispielsweise durch Naß-Vermahlung mittels handelsüblicher Perlmühlen und gegebenenfalls Zusatz von Tensiden, wie sie z.B. oben bei den anderen Formulierungstypen bereits aufgeführt sind, hergestellt werden.

Emulsionen, z.B. Öl-in-Wasser-Emulsionen (EW), lassen sich beispielsweise mittels Rührern, Kolloidmühlen und/oder statischen Mischern unter Verwendung von wäßrigen organischen Lösungsmitteln und gegebenenfalls Tensiden, wie sie z.B. oben bei den anderen Formulierungstypen bereits aufgeführt sind, herstellen.

Granulate können entweder durch Verdüsen des Wirkstoffes auf adsorptionsfähiges, granuliertes Inertmaterial hergestellt werden oder durch Aufbringen von Wirkstoffkonzentraten mittels Klebemitteln, z.B.

Polyvinylalkohol, polyacrylsaurem Natrium oder auch Mineralölen, auf die Oberfläche von Trägerstoffen wie Sand, Kaolinite oder von granuliertem Inertmaterial. Auch können geeignete Wirkstoffe in der für die Herstellung von Düngemittelgranulaten üblichen Weise - gewünschtenfalls in Mischung mit Düngemitteln - granuliert werden.

Wasserdispergierbare Granulate werden in der Regel nach den üblichen

Verfahren wie Sprühtrocknung, Wirbelbett-Granulierung, Teller-Granulierung, Mischung mit Hochgeschwindigkeitsmischern und Extrusion ohne festes Inertmaterial hergestellt.

Zur Herstellung von Teller-, Fließbett-, Extruder- und Sprühgranulate siehe z.B. Verfahren in "Spray-Drying Handbook" 3rd ed. 1979, G. Goodwin Ltd., London; J.E. Browning, "Agglomeration", Chemical and Engineering 1967, Seiten 147 ff; "Perry's Chemical Engineer's Handbook", 5th Ed., McGraw-Hill, New York 1973, S. 8-57.

Für weitere Einzelheiten zur Formulierung von Pflanzenschutzmitteln siehe z.B. G.C. Klingman, "Weed Control as a Science", John Wiley and Sons, Inc., New York, 1961, Seiten 81-96 und J.D. Freyer, S.A. Evans, "Weed Control Handbook", 5th Ed., Blackwell Scientific Publications, Oxford, 1968, Seiten 101-103.

Die agrochemischen Zubereitungen enthalten in der Regel 0,1 bis 99 Gew.-%, insbesondere 0,1 bis 95 Gew.-%, Wirkstoff der Formel (I).

In Spritzpulvern beträgt die Wirkstoffkonzentration z.B. etwa 10 bis 90 Gew.-%, der Rest zu 100 Gew.-% besteht aus üblichen

Formulierungsbestandteilen. Bei emulgierbaren Konzentraten kann die Wirkstoffkonzentration etwa 1 bis 90, vorzugsweise 5 bis 80 Gew.-% betragen. Staubbörmige Formulierungen enthalten 1 bis 30 Gew.-% Wirkstoff, vorzugsweise meistens 5 bis 20 Gew.-% an Wirkstoff; versprühbare Lösungen enthalten etwa 0,05 bis 80, vorzugsweise 2 bis 50 Gew.-% Wirkstoff. Bei wasserdispergierbaren Granulaten hängt der Wirkstoffgehalt zum Teil davon ab, ob die wirksame Verbindung flüssig oder fest vorliegt und welche Granulierhilfsmittel, Füllstoffe usw. verwendet werden. Bei den in Wasser dispergierbaren Granulaten liegt der Gehalt an Wirkstoff beispielsweise zwischen 1 und 95 Gew.-%, vorzugsweise zwischen 10 und 80 Gew.-%.

Daneben enthalten die genannten Wirkstoffformulierungen gegebenenfalls die

jeweils üblichen Haft-, Netz-, Dispergier-, Emulgi r-, Penetrations-, Konservierungs-, Frostschutz- und Lösungsmittel, Füll-, Träger- und Farbstoffe, Entschäumer, Verdunstungshemmer und den pH-Wert und die Viskosität beeinflussende Mittel.

Als Kombinationspartner für die erfindungsgemäßen Wirkstoffe in Mischungsformulierungen oder im Tank-Mix sind beispielsweise bekannte Wirkstoffe einsetzbar, wie sie in z.B. aus Weed Research 26, 441-445 (1986), oder "The Pesticide Manual", 10th edition, The British Crop Protection Council and the Royal Soc. of Chemistry, 1994 und dort zitierter Literatur beschrieben sind. Als literaturbekannte Herbizide, die mit den Verbindungen der Formel (I) kombiniert werden können, sind z.B. folgende Wirkstoffe zu nennen (Anmerkung: Die Verbindungen sind entweder mit dem "common name" nach der International Organization for Standardization (ISO) oder mit dem chemischen Namen, ggf. zusammen mit einer üblichen Codenummer bezeichnet):

acetochlor; acifluorfen; aclonifen; AKH 7088, d.h. [[[1-[5-(2-Chloro-4-(trifluoromethyl)-phenoxy]-2-nitrophenyl]-2-methoxyethylidene]-amino]-oxy]-essigsäure und -essigsäuremethylester; alachlor; alloxydim; ametryn; amidosulfuron; amitrol; AMS, d.h. Ammoniumsulfamat; anilofos; asulam; atrazin; azimsulfurone (DPX-A8947); aziprotryn; barban; BAS 516 H, d.h. 5-Fluor-2-phenyl-4H-3,1-benzoxazin-4-on; benazolin; benfluralin; benfuresate; bensulfuron-methyl; bensulide; bentazone; benzoferap; benzofluor; benzoyl-prop-ethyl; benzthiazuron; bialaphos; bifenox; bromacil; bromobutide; bromofenoxim; bromoxynil; bromuron; buminafos; busoxinone; butachlor; butamifos; butenachlor; buthidazole; butralin; butylate; cafenstrole (CH-900); carbetamide; cafentrazone (ICI-A0051); CDAA, d.h. 2-Chlor-N,N-di-2-propenylacetamid; CDEC, d.h. Diethyldithiocarbaminsäure-2-chlorallylester; chlomethoxyfen; chloramben; chlorazifop-butyl, chlormesulon (ICI-A0051); chlorbromuron; chlorbufam; chlorfenac; chlorflurecol-methyl; chloridazon; chlorimuron-ethyl; chlornitrofen; chlorotoluron; chloroxuron; chlorpropham;

chlorsulfuron; chlorthal-dimethyl; chlorthiamid; cinmethylin; cinosulfuron;
clethodim; clodinafop und dessen Esterderivate (z.B. clodinafop-propargyl);
clomazone; clomeprop; cloproxydim; clopyralid; cumyluron (JC 940);
cyanazine; cycloate; cyclosulfamuron (AC 104); cycloxydim; cycluron;
cyhalofop und dessen Esterderivate (z.B. Butylester, DEH-112); cyperquat;
cyprazine; cyprazole; daimuron; 2,4-DB; dalapon; desmedipham; desmetryn;
di-allate; dicamba; dichlobenil; dichlorprop; diclofop und dessen Ester wie
diclofop-methyl; diethatyl; difenoxuron; difenzoquat; diflufenican; dimefuron;
dimethachlor; dimethametryn; dimethenamid (SAN-582H); dimethazone,
clomazon; dimethipin; dimetrasulfuron, dinitramine; dinoseb; dinoterb;
diphenamid; dipropetryn; diquat; dithiopyr; diuron; DNOC; eglinazine-ethyl;
EL 77, d.h. 5-Cyano-1-(1,1-dimethylethyl)-N-methyl-1H-pyrazole-4-carboxamid;
endothal; EPTC; esprocarb; ethalfluralin; ethametsulfuron-methyl; ethidimuron;
ethiozin; ethofumesate; F5231, d.h. N-[2-Chlor-4-fluor-5-[4-(3-fluorpropyl)-4,5-
dihydro-5-oxo-1H-tetrazol-1-yl]-phenyl]-ethansulfonamid; ethoxyfen und dessen
Ester (z.B. Ethylester, HN-252); etobenzanid (HW 52); fenoprop; fenoxan,
fenoxaprop und fenoxaprop-P sowie deren Ester, z.B. fenoxaprop-P-ethyl und
fenoxaprop-ethyl; fenoxydim; fenuron; flamprop-methyl; flazasulfuron; fluazifop
und fluazifop-P und deren Ester, z.B. fluazifop-butyl und fluazifop-P-butyl;
fluchloralin; flumetsulam; flumeturon; flumiclorac und dessen Ester (z.B.
Pentylester, S-23031); flumioxazin (S-482); flumipropyn; flupoxam (KNW-739);
fluorodifen; fluoroglycofen-ethyl; flupropacil (UBIC-4243); fluridone;
flurochloridone; fluroxypyr; flurtamone; fomesafen; fosamine; furyloxyfen;
glufosinate; glyphosate; halosafen; halosulfuron und dessen Ester (z.B.
Methylester, NC-319); haloxyfop und dessen Ester; haloxyfop-P (= R-
haloxyfop) und dessen Ester; hexazinone; imazamethabenz-methyl; imazapyr;
imazaquin und Salze wie das Ammoniumsalz; imazethamethapyr; imazethapyr;
imazosulfuron; ioxynil; isocarbamid; isopropalin; isoproturon; isouron; isoxaben;
isoxapyrifop; karbutilate; lactofen; lenacil; linuron; MCPA; MCPB; mecoprop;
mefenacet; mefluidid; metamitron; metazachlor; methabenzthiazuron; metham;
methazole; methoxyphenone; methyldymron; metabenzuron, methobenzuron;

m tobromuron; metolachlor; metosulam (XRD 511); metoxuron; metribuzin; metsulfuron-methyl; MH; molinate; monalide; monocarbamide dihydrogensulfate; monolinuron; monuron; MT 128, d.h. 6-Chlor-N-(3-chlor-2-propenyl)-5-methyl-N-phenyl-3-pyridazinamin; MT 5950, d.h. N-[3-Chlor-4-(1-methylethyl)-phenyl]-2-methylpentanamid; naproanilide; napropamide; naptalam; NC 31.0, d.h. 4-(2,4-dichlorbenzoyl)-1-methyl-5-benzyloxypyrazol; neburon; nicosulfuron; nipyraclufen; nitralin; nitrofen; nitrofluorfen; norflurazon; orbencarb; oryzalin; oxadiargyl (RP-020630); oxadiazon; oxyfluorfen; paraquat; pebulate; pendimethalin; perfluidone; phenisopham; phenmedipham; picloram; piperophos; piributicarb; pirifenop-butyl; pretilachlor; primisulfuron-methyl; procyazine; prodiamine; profluralin; proglinazine-ethyl; prometon; prometryn; propachlor; propanil; propaquizafop und dessen Ester; propazine; propham; propisochlor; propyzamide; prosulfalin; prosulfocarb; prosulfuron (CGA-152005); prynachlor; pyrazolate; pyrazon; pyrazosulfuron-ethyl; pyrazoxyfen; pyridate; pyriothiobac (KIH-2031); pyroxofop und dessen Ester (z.B. Propargylester); quinclorac; quinmerac; quinofofop und dessen Esterderivate, quizalofop und quizalofop-P und deren Esterderivate z.B. quizalofop-ethyl; quizalofop-P-tefuryl und -ethyl; renniduron; rimsulfuron (DPX-E 9636); S 275, d.h. 2-[4-Chlor-2-fluor-5-(2-propynyloxy)-phenyl]-4,5,6,7-tetrahydro-2H-indazol; sebumeton; sethoxydim; siduron; simazine; simetryn; SN 106279, d.h. 2-[[7-[2-Chlor-4-(trifluor-methyl)-phenoxy]-2-naphthalenyl]-oxy]-propansäure und -methylester; sulcotrione, sulfentrazon (FMC-97285, F-6285); sulfazuron; sulfometuron-methyl; sulfosate (ICI-A0224); TCA; tebutam (GCP-5544); tebuthiuron; terbacil; terbucarb; terbutachlor; terbumeton; terbuthylazine; terbutryn; TFH 450, d.h. N,N-Diethyl-3-[(2-ethyl-6-methylphenyl)-sulfonyl]-1H-1,2,4-triazol-1-carboxamid; thenylchlor (NSK-850); thiazafluron; thizopyr (Mon-13200); thidiazimin (SN-24085); thifensulfuron-methyl; thiobencarb; tiocarbamil; tralkoxydim; tri-allate; triasulfuron; triazofenamide; tribenuron-methyl; triclopyr; tridiphane; trietazine; trifluralin; triflurosulfuron und Ester (z.B. Methylester, DPX-66037); trimeturon; tsitodef; vernolate; WL 110547, d.h. 5-Phenoxy-1-[3-(trifluormethyl)-phenyl]-

1H-tetrazol; UBH-509; D-489; LS 82-556; KPP-300; NC-324; NC-330; KH-218; DPX-N8189; SC-0774; DOWCO-535; DK-8910; V-53482; PP-600; MBH-001; KIH-9201; ET-751; KIH-6127 und KIH-2023.

Zur Anwendung werden die in handelsüblicher Form vorliegenden Formulierungen gegebenenfalls in üblicher Weise verdünnt z.B. bei Spritzpulvern, emulgierbaren Konzentraten, Dispersionen und wasserdispergierbaren Granulaten mittels Wasser. Staubbörmige Zubereitungen, Boden- bzw. Streugranulate sowie versprühbare Lösungen werden vor der Anwendung üblicherweise nicht mehr mit weiteren inerten Stoffen verdünnt.

Mit den äußeren Bedingungen wie Temperatur, Feuchtigkeit, der Art des verwendeten Herbizids, u.a. variiert die erforderliche Aufwandmenge der Verbindungen der Formel (I). Sie kann innerhalb weiter Grenzen schwanken, z.B. zwischen 0,001 und 10,0 kg/ha oder mehr Aktivsubstanz, vorzugsweise liegt sie jedoch zwischen 0,005 und 5 kg/ha.

A. Chemische Beispiele

Beispiel A1

2-Amino-4-(1-fluor-1-methyl-ethyl)-6-[1-(indan-2-yl)-1-ethylamino]-1,3,5-triazin (siehe Tabelle 2, Beispiel 2.17)

Zu 7,0 g (0,025 mol) 1-Biguanidino-1-(indan-2-yl)ethanhydrochlorid in 50 ml Methanol und 7 g gemahlenem Molekularsieb 3Å wird eine aus 1,2 g (0,05 mol) Natrium und 100 ml Methanol hergestellte Methanolatlösung gegeben. Danach fügt man 6,0 g (0,045 mol) 1-Fluor-isobuttersäureethylester hinzu und rührt 2 Stunden bei 25°C und dann 4 Stunden bei 65°C. Die Reaktionsmischung wird filtriert, das Filtrat eingeeengt und der Rückstand in Ethylacetat aufgenommen. Es wird mit Wasser gewaschen, die organische Phase abgetrennt und mit

Natriumsulfat getrocknet. Das Trockenmittel wird abfiltriert und das Lösungsmittel im Vakuum eingedampft. Nach Reinigung mit Säulenchromatographie (Laufmittel: Essigsäureethylester) erhält man 4,8 g (61 % d.Th.) 2-Amino-4-(1-fluor-1-methyl-ethyl)-6-[1-(indan-2-yl)-1-ethylamino]-1,3,5-triazin.

Beispiel A2

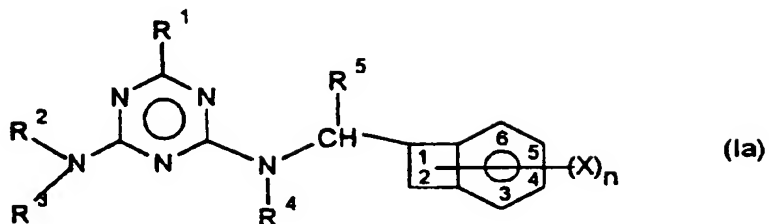
2-Amino-4-isopropyl-6-[1-(1-methylbenzimidazol-2-yl)-1-ethylamino]-1,3,5-triazin (siehe Tabelle 16, Beispiel 16.3)

2,6 g (0,015 mol) 2-Amino-4-chlor-6-isopropyl-1,3,5-triazin und 4,2 g (0,03 mol) K_2CO_3 werden in 50 ml Acetonitril vorgelegt. Zu dieser Lösung fügt man 3,8 g (0,015 mol) 1-Methylbenzimidazol-hydrobromid hinzu und erhitzt anschließend 3 Stunden am Rückfluß. Danach werden alle festen Bestandteile abgesaugt und das Filtrat einrotiert. Der Rückstand wird mittels Säulenchromatographie (Laufmittel: Essigsäureethylester) gereinigt. Man erhält 4,1 g (88 % d.Th.) 2-Amino-4-isopropyl-6-[1-(1-methyl-benzimidazol-2-yl)-1-ethylamino]-1,3,5-triazin.

Die in den Tabellen 1 bis 17 beschriebenen Verbindungen erhält man gemäß oder analog zu den vorstehenden Beispielen A1 und A2. In der Tabelle bedeuten:

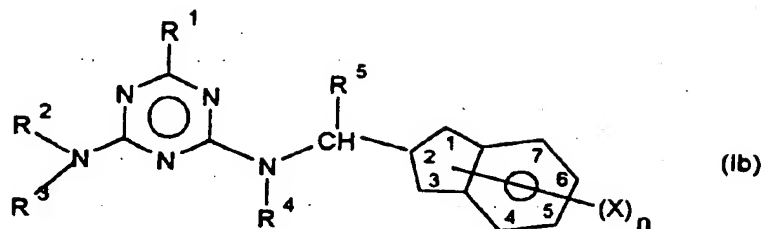
Nr.	=	Beispiel oder Beispielnummer
Phys. Daten	=	Charakteristische physikalische Daten der Verbindung
Me	=	Methyl
OMe	=	Methoxy
Et	=	Ethyl
Pr	=	Propyl
i-Pr	=	Isopropyl
c-Pr	=	Cyclopropyl
1-Me-c-Pr	=	1-Methyl-cyclopropyl
c-C ₅ H ₉	=	Cyclopentyl
c-C ₄ H ₇	=	Cyclobutyl
c-C ₆ H ₁₁	=	Cyclohexyl
t-Bu	=	tertiär-Butyl
Ph	=	Phenyl
(X) _n	=	Position und Art des Substituenten am Phenylring (Position 1 = Bindung zu A); "-" = kein Substituent am Phenylring (n = 0)

Tabelle 1: Verbindungen der Formel (Ia)

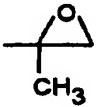


Nr.	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	(X) _n	Phys. Daten
1.1	CF ₃	H	H	H	Me	-	
1.2	CF ₂ CHF ₂	H	H	H	Me	5-Me	
1.3	i-Pr	H	H	H	Me	-	
1.4	i-Pr	H	H	H	Et	-	
1.5	i-Pr	H	H	H	Me	5-Me	
1.6	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	Me	-	
1.7	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	Et	-	
1.8	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	Me	4,5-Me ₂	
1.9	c-C ₅ H ₉	H	H	H	Me	-	
1.10	c-Pr	H	H	H	Me	-	
1.11	CF(CH ₃) ₂	CHO	H	H	Me	-	
1.12	CF(CH ₃) ₂	CHO	Me	H	Me	-	
1.13	CF(CH ₃) ₂	COMe	H	H	Me	-	
1.14	CF(CH ₃) ₂	COMe	Me	H	Me	-	
1.15	CF ₃	COPh	H	H	Me	-	
1.16	CF ₃	COOPh	H	H	Me	-	
1.17	CF(CH ₃) ₂	-(CH ₂) ₅ -		H	Me	-	
1.18	CF(CH ₃) ₂	-(CH ₂) ₂ -O-(CH ₂) ₂ -		H	Me	-	

Tab lle 2: Verbindungen der F rmel (Ib)



Nr.	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	(X) _n	Phys. Daten
2.1	CF ₃	H	H	H	Et	-	
2.2	CF ₃	H	H	H	Me	-	
2.3	CF ₂ CHF ₂	H	H	H	Me	-	
2.4	CF ₂ CHF ₂	H	H	H	Et	-	
2.5	CCl(CH ₃) ₂	H	H	H	Me	-	
2.6	CCl(CH ₃) ₂	H	H	H	Et	-	
2.7	CBr(CH ₃) ₂	H	H	H	Me	-	
2.8	CBr(CH ₃) ₂	H	H	H	Me	5-Me	
2.9	CBr(CH ₃) ₂	H	H	H	Et	5-Me	
2.10	i-Pr	H	H	H	Me	-	NMR, siehe Ende Tabelle
2.11	i-Pr	Me	Me	H	Me	-	
2.12	i-Pr	H	H	Me	Me	-	
2.13	i-Pr	Me	H	H	Me	-	
2.14	i-Pr	H	H	H	Me	5-Me	
2.15	i-Pr	H	H	H	Me	5,6-Me ₂	NMR, siehe Ende Tabelle
2.16	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	Me	4-Cl	
2.17	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	Me	-	NMR, siehe Ende Tabelle
2.18	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	Et	-	

Nr.	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	(X) _n	Phys. Daten
2.19	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	Pr	-	
2.20	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	Me	5-Me	
2.21	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	Me	5,6-Me ₂	
2.22	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	Me	5-OCH ₃	
2.23	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	CF ₃	-	
2.24	CHF ₂	H	H	H	Me	-	
2.25	C ₆ H ₅ -CH ₂	H	H	H	Me	-	
2.26	t-Bu	H	H	H	Me	-	
2.27	CH ₂ CH(CH ₃) ₂	H	H	H	Me	-	
2.28	CH ₂ CH ₂ OCH ₃	H	H	H	Me	-	
2.29	CH(OCH ₃)CH ₃	H	H	H	Me	-	
2.30	c-Pr	H	H	H	Me	-	
2.31	1-Me-c-Pr	H	H	H	Me	-	
2.32	1-F-c-Pr	H	H	H	Me	-	
2.33		H	H	H	Me	-	
2.34	c-Pr-CH ₂	H	H	H	Me	-	
2.35	c-Pr-CH ₂	H	H	H	Et	-	
2.36	CF(CH ₃) ₂	CHO	H	H	Me	-	
2.37	c-Pr-CH ₂	COMe	H	H	Me	-	
2.38	c-Pr-CH ₂	COPh	H	H	Me	-	
2.39	c-Pr-CH ₂	Et	Et	H	Me	-	
2.40	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	c-Pr	-	
2.41	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	c-C ₅ H ₉	-	
2.42	CH(CH ₃) ₂	H	H	H	c-Pr	-	
2.43	CH(CH ₃) ₂	H	H	H	c-C ₅ H ₉	-	
2.44	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	i-Pr	-	
2.45	CH(CH ₃) ₂	H	H	H	i-Pr	-	

Nr.	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	(X) _n	Phys. Daten
2.46	CH(CH ₃) ₂	H	H	H	CHMeEt	-	
2.47	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	CHMeEt	-	
2.48	CH(CH ₃) ₂	H	H	H	CH ₂ F	-	
2.49	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	CH ₂ F	-	
2.50	CH(CH ₃) ₂	H	H	H	CHMeOMe	-	
2.51	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	CHMeOMe	-	
2.52	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	t-Bu	-	
2.53	CH(CH ₃) ₂	H	H	H	t-Bu	-	
2.54	c-Pr	H	H	H	c-Pr	-	
2.55	c-Pr	H	H	H	2-Me-c-Pr	-	
2.56	CH(CH ₃) ₂	H	H	H	Et	5,6-Cl ₂	
2.57	COH(CH ₃) ₂	H	H	H	Me	-	
2.58	n-C ₃ H ₇	H	H	H	Et	-	
2.59	Ph	H	H	H	Me	-	
2.60	CH ₂ CF ₃	H	H	H	Me	-	
2.61	CH ₂ CF ₃	H	H	H	Me	-	
2.62	CH ₂ CF ₃	H	H	H	Et	-	
2.63	CH ₂ CF ₃	H	H	H	c-Pr	-	
2.64	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	CF ₂ CF ₃	-	
2.65	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	CH ₂ CF ₃	-	
2.66	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	CCl ₃	-	
2.67	i-Pr	H	H	H	CCl ₃	-	
2.68	i-Pr	H	H	H	CH ₂ CF ₃	-	
2.69	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	Me	4-Me	
2.70	i-Pr	H	H	H	Et	-	
2.71	CH ₂ CH(CH ₃) ₂	H	H	H	Me	5-Me	
2.72	CH ₂ CH(CH ₃) ₂	H	H	H	Me	-	
2.73	CHCH ₃ C ₂ H ₅	H	H	H	Me	-	
2.74	CHCH ₃ OCH ₃	H	H	H	H	-	

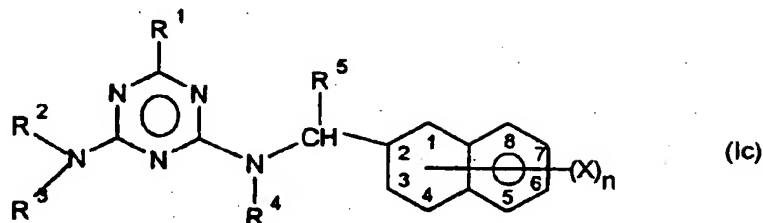
NMR-Daten zu einzelnen Beispielen:

zu Beispiel 2.10: $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3): $\delta = 1,2$ (m, 9H); 2,6 (m, 1H); 2,8 (m, 2H); 3,0 (m, 2H); 4,2 (m, 1H); 7,1 (m, 4H)

zu Beispiel 2.15: $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3): $\delta = 1,2$ (m, 9H); 2,2 (s, 6H); 2,5 (m, 1H); 2,7 (m, 2H); 2,9 (m, 2H); 4,2 (m, 1H); 7,0 (s, 1H); 7,0 (s, 1H)

zu Beispiel 2.17: $^1\text{H-NMR}$ (DMSO-d_6): $\delta = 1,1$ (d, 3H); 1,5 (s, 3H); 1,6 (s, 3H); 2,7 (m, 2H); 2,9 (m, 2H); 4,1 (m, 1H); 7,1 (m, 4H)

Tabelle 3: Verbindungen der Formel (Ic)

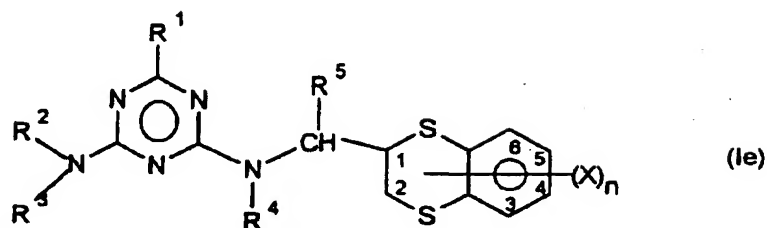


Nr.	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	(X) _n	Phys. Daten
3.1	Me	H	H	H	Me	-	
3.2	Et	H	H	H	Me	-	
3.3	Et	H	H	H	Et	-	
3.4	Pr	H	H	H	Pr	-	
3.5	t-Bu	H	H	H	Me	-	
3.6	t-Bu	H	H	H	Et	-	
3.7	t-Bu	H	H	Me	Me	-	
3.8	i-Pr	H	H	H	Me	-	
3.9	i-Pr	H	H	H	Et	-	
3.10	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	Me	-	
3.11	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	Et	-	
3.12	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	Me	6,7-Me ₂	
3.13	1-Cl-c-Pr	H	H	H	Et	-	
3.14	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	CF ₃	-	
3.15	CH(CH ₃) ₂	H	H	H	CF ₃	-	
3.16	CF(CH ₃) ₂	Me	Me	H	CF ₂ CHF ₂	-	
3.17	CF(CH ₃) ₂	CHO	H	H	Me	-	
3.18	CF(CH ₃) ₂	CHO	Me	Me	Me	-	
3.19	c-Pr-CH ₂	H	H	H	Me	-	
3.20	c-Pr-CH ₂	Me	Me	H	Me	-	
3.21	CF(CH ₃) ₂	H	H	Me	Me	-	

51

Nr.	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	(X) _n	Phys. Daten
3.22	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	c-Pr	-	
3.23	CH(CH ₃) ₂	H	H	H	c-Pr	-	
3.24	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	i-Pr	-	
3.25	CH(CH ₃) ₂	H	H	H	i-Pr	-	
3.26	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	c-Pr	5-OMe	
3.27	CH(CH ₃) ₂	H	H	H	c-Pr	5-OMe	
3.28	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	c-Pr	5-Cl	
3.29	CH(CH ₃) ₂	H	H	H	c-Pr	5-Cl	
3.30	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	t-Bu	-	
3.31	CH(CH ₃) ₂	H	H	H	t-Bu	-	
3.32	c-Pr	H	H	H	Me	-	
3.33	c-Pr	H	H	H	Et	-	
3.34	c-Pr	H	H	H	c-Pr	-	
3.35	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	CF ₃	-	
3.36	CH(CH ₃) ₂	H	H	H	CF ₃	-	
3.37	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	CH ₂ F	-	

Tabelle 4: Verbindungen der Formel (Ie)



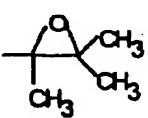
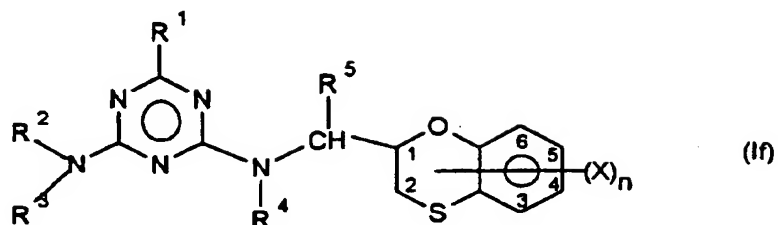
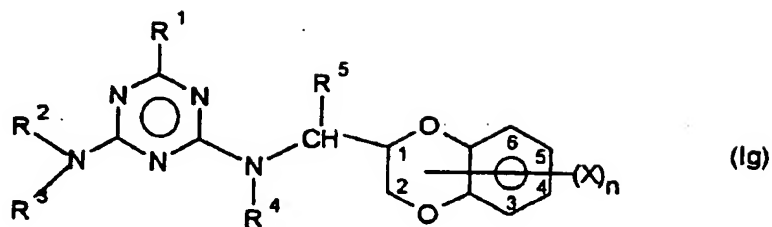
Nr.	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	(X) _n	Phys. Daten
4.1	i-Pr	H	H	H	Me	-	
4.2	i-Pr	H	H	H	Et	-	
4.3	i-Pr	H	H	H	i-Pr	3,6-F ₂	
4.4	i-Pr	H	H	H	Me	4,5-F ₂	
4.5	Me	H	H	Pr	Me	-	
4.6	Me	Et	Et	H	Me	-	
4.7	CHF ₂	Me	Me	H	H	-	
4.8	CHF ₂	Me	Et	H	H	-	
4.9	1-OH-c-Pr	H	H	H	Et	-	
4.10		H	H	H	Me	-	
4.11	CF(CH ₃) ₂	CHO	H	H	Me	-	
4.12	CF(CH ₃) ₂	H	H	CHO	Me	-	
4.13	CF ₃ (CH ₃) ₂	COMe	H	H	Me	-	
4.14	c-Pr-CH ₂	H	H	H	Me	-	
4.15	c-Pr-CH ₂	H	H	H	Et	-	
4.16	CF(CH ₃) ₂	COOMe	H	H	Me	-	
4.17	CF ₃	H	H	H	Me	-	

Tabelle 5: Verbindungen d r Formel (If)



Nr.	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	(X) _n	Phys. Daten
5.1	i-Pr	H	H	H	H	3,6-(OCH ₃) ₂	
5.2	i-Pr	H	H	H	H	2-Me	
5.3	Et	H	H	CH ₃	H	-	
5.4	Et	H	H	H	Me	-	
5.5	CH ₂ CH ₂ CH ₂ Cl	H	H	H	Et	-	
5.6	CHCl ₂	H	H	H	Et	-	
5.7	CH ₂ CH ₂ OCH ₃	H	H	H	Et	-	
5.8	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	Me	-	
5.9	CF ₃	H	H	H	Me	6-COMe	
5.10	CF ₃	H	H	H	Me	-	
5.11	CF(CH ₃) ₂	Me	H	H	Me	-	
5.12	CF(CH ₃) ₂	CHO	H	H	Me	-	
5.13	c-Pr-CH ₂	H	H	H	Me	-	
5.14	c-Pr-CH ₂	H	H	H	Et	-	
5.15	CF ₃	-(CH ₂) ₄ -		H	Me		
5.16	CF ₃	(CH ₂) ₂ -O-(CH ₂) ₂		H	Me		

Tab. 6: Verbindungen der Form I (Ilg)



Nr.	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	(X) _n	Phys. Daten
6.1	i-Pr	H	H	H	Me	-	
6.2	i-Pr	H	H	H	Me	5-Me	NMR, siehe Ende Tabelle
6.3	i-Pr	H	H	H	Et	-	
6.4	i-Pr	H	H	H	Et	5-Me	
6.5	i-Pr	H	H	H	Me	4,5-Cl ₂	
6.6	i-Pr	H	H	H	Me	3,6-Br ₂	
6.7	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	Me	-	NMR, siehe Ende Tabelle
6.8	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	Et	-	
6.9	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	Me	5-Me	NMR, siehe Ende Tabelle
6.10	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	Me	-	
6.11	CF ₂ CHF ₂	H	H	H	Et	4,5-F ₂	
6.12	c-Pr	H	H	H	Me	-	
6.13	1-F-c-Pr	H	H	H	Me	-	
6.14	1-OMe-c-Pr	H	H	H	Me	-	
6.15	CH ₂ CH(CH ₃) ₂	H	H	H	Me	-	
6.16	CCl(CH ₃) ₂	H	H	H	Me	-	

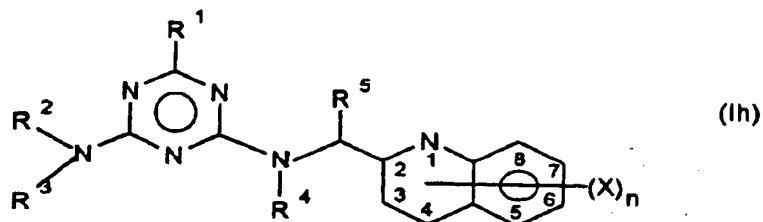
NMR-Daten zu einigen Beispielen:

zu Beispiel 6.2: ¹H-NMR (CDCl₃): δ = 1,2 (m, 9H); 2,2 (s, 3H); 3,9-4,3 (m, 4H); 6,7 (m, 3H)

zu Beispiel 6.7: $^1\text{H-NMR}$ (DMSO-d_6): $\delta = 1,2$ (m, 3H); 1,5 (s, 3H); 1,6 (s, 3H); 3,9 - 4,3 (m, 4H); 6,8 (m, 4H)

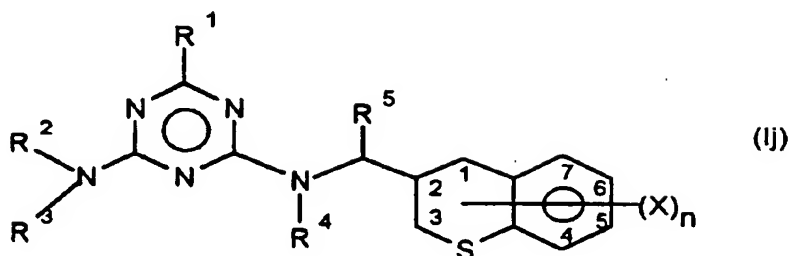
zu Beispiel 6.9: $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3): $\delta = 1,3$ (m, 3H); 1,6 (s, 3H); 1,7 (s, 3H); 2,2 (s, 3H); 3,9 - 4,3 (m, 4H); 6,7 (m, 3H)

Tabelle 7: Verbindungen der Formel (Ih)



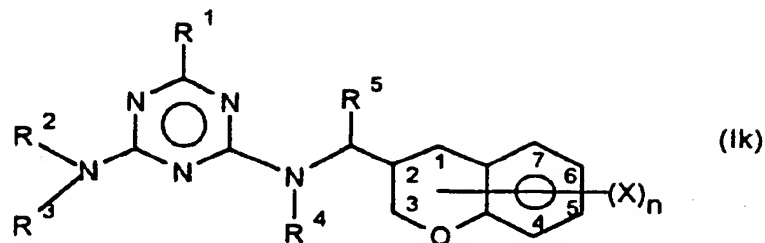
Nr.	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	(X) _n	Phys. Daten
7.1	CH ₂ CH ₂ F	Me	H	H	Me	1-Me	
7.2	CH ₂ CH ₂ Br	CHO	H	H	Me	1,6-Me ₂	
7.3	i-Pr	H	H	H	i-Pr	1-Me	
7.4	i-Pr	CHO	H	H	i-Pr	1-Et	
7.5	1-Me-c-Pr	H	H	H	Me	-	
7.6	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	Me	-	
7.7	CF(CH ₃) ₂	Me	Me	H	Me	-	
7.8	CF(CH ₃) ₂	Et	Et	H	Me	-	

Tabelle 8: Verbindungen der Form I (Ij)



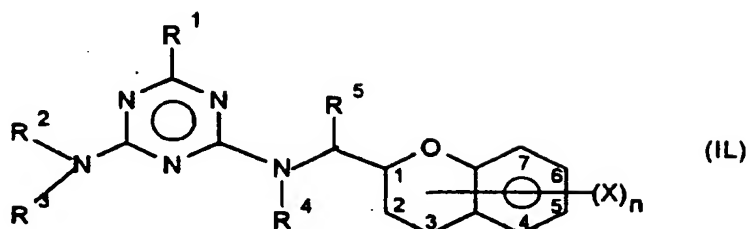
Nr.	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	(X) _n	Phys. Daten
8.1	i-Pr	H	H	H	Me	-	
8.2	i-Pr	H	H	Me	Me	-	
8.3	i-Pr	H	H	Et	Me	-	
8.4	i-Pr	H	H	H	Et	3-Me	
8.5	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	Me	-	
8.6	CH ₂ F	Me	Me	H	H	-	
8.7	CF ₃	Et	Et	H	H	-	

Tabelle 9: Verbindung n der Formel (Ik)



Nr.	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	(X) _n	Phys. Daten
9.1	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	CH ₃	-	
9.2	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	Et	-	
9.3	t-Bu	H	H	H	Me	-	
9.4	n-C ₄ H ₉	H	H	H	Et	-	
9.5	CH ₂ CH(CH ₃) ₂	H	H	H	Et	-	
9.6	i-Pr	H	H	H	Me	6-Me	
9.7	i-Pr	H	H	H	Me	-	
9.8	i-Pr	H	H	H	Me	5-Me	
9.9	i-Pr	H	H	H	Me	6-Cl	
9.10	i-Pr	H	H	H	Me	6-Br	
9.11	i-Pr	H	H	H	Me	6-F	
9.12	i-Pr	H	H	H	Me	4,6-Me ₂	
9.13	c-Pr	H	H	H	Me	-	

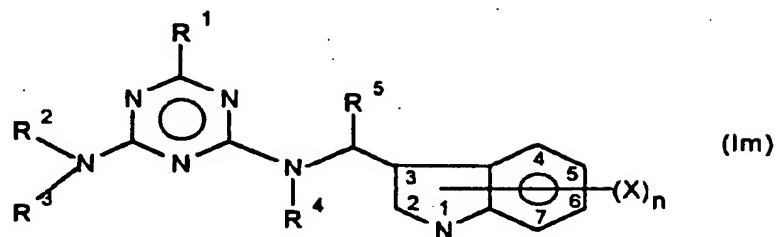
Tabelle 10: Verbindungen der Formel (II)



Nr.	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	(X) _n	Phys. Daten
10.1	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	Me	4,6-Me ₂	
10.2	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	Me	-	
10.3	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	Me	2-Me	
10.4	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	Me	6-Me	
10.5	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	Et	-	
10.6	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	Et	6-Me	
10.7	i-Pr	H	H	H	Me	6-Me	
10.8	i-Pr	H	H	H	Me	-	
10.9	CF ₂ CHF ₂	H	H	H	Me	-	
10.10	CF ₂ CHF ₂	H	H	H	Me	3-OCH ₃	
10.11	1-F-c-Pr	H	H	H	Me	-	
10.12	i-Pr	H	H	H	Et	-	
10.13	i-Pr	H	H	H	Et	-	
10.14	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	Me	6-OCH ₃	
10.15	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	Me	6-Cl	
10.16	CH(CH ₃) ₂	H	H	H	Me	6-OCH ₃	
10.17	CH(CH ₃) ₂	H	H	H	Me	6-Cl	
10.18	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	i-Pr	-	
10.19	CH(CH ₃) ₂	H	H	H	i-Pr	-	

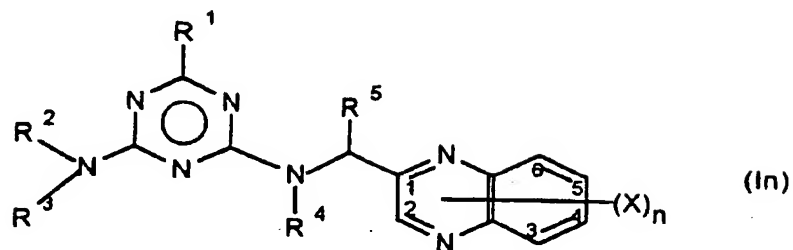
Nr.	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	(X) _n	Phys. Daten
10.20	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	c-Pr	-	
10.21	CH(CH ₃) ₂	H	H	H	c-Pr	-	
10.22	CH(CH ₃) ₂	H	H	H	CF ₃	-	
10.23	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	CF ₃	-	
10.24	CH(CH ₃) ₂	H	H	H	CH ₂ F	-	
10.25	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	CH ₂ F	-	
10.26	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	Et	6-Me	
10.27	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	Me	6-Me	
10.28	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	n-Pr	-	
10.29	CH(CH ₃) ₂	H	H	H	n-Pr	-	
10.30	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	CH ₂ CCl ₃	-	
10.31	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	CH ₂ CF ₃	-	
10.32	i-Pr	H	H	H	CF ₂ CF ₃	-	
10.33	CH ₂ -CH(CH ₃) ₂	H	H	H	CF ₃	-	
10.34	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	c-C ₅ H ₉	-	
10.35	CH(CH ₃) ₂	H	H	H	c-C ₄ H ₇	-	
10.36	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	c-C ₈ H ₁₁	-	
10.37	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	t-Bu	-	
10.38	CH(CH ₃) ₂	H	H	H	t-Bu	-	

Tabelle 11: Verbindungen der Formel (Im)



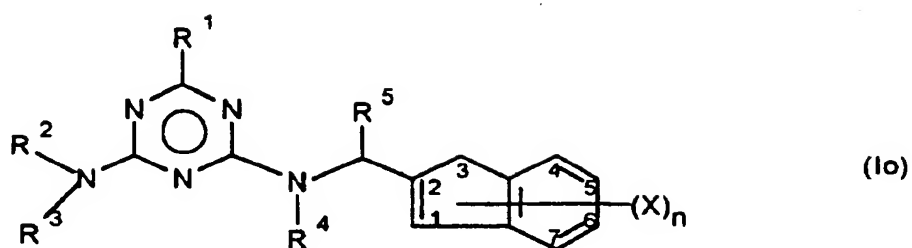
Nr.	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	(X) _n	Phys. Daten
11.1	t-Bu	CH ₃	H	H	Me	-	
11.2	t-Bu	CH ₃	H	Me	i-Pr	-	
11.3	t-Bu	CH ₃	H	H	H	-	
11.4	t-Bu	CH ₃	H	H	Me	-	
11.5	CH ₃	H	H	H	Me	-	
11.6	CH ₃	H	H	H	Et	-	
11.7	i-Pr	H	H	H	Me	-	
11.8	i-Pr	H	H	H	Me	5-Cl	
11.9	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	CH ₃	-	
11.10	CF(CH ₃) ₂	Me	Me	H	CH ₃	-	
11.11	CF(CH ₃) ₂	Pr	H	H	CH ₃	-	

Tabelle 12: Verbindungen der Formel (In)



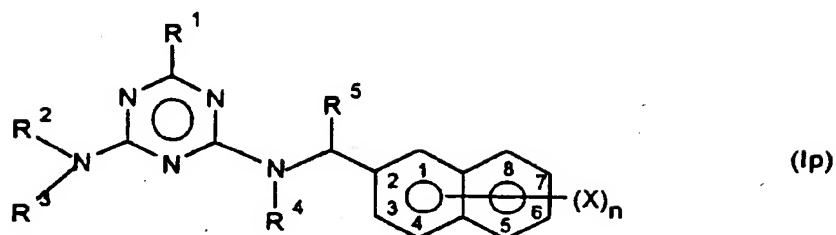
Nr.	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	(X) _n	Phys. Daten
12.1	CF ₃	H	H	H	Me	-	
12.2	CF ₃	H	H	H	Et	5,6-Me ₂	
12.3	CCl ₃	H	H	H	Me	-	
12.4	CCl ₃	H	H	H	Et	-	
12.5	t-Bu	H	H	Me	Me	-	
12.6	t-Bu	Me	Me	H	H	-	
12.7	i-Pr	H	H	H	Me	-	
12.8	i-Pr	H	H	H	Et	-	
12.9	i-Pr	H	H	H	Pr	-	
12.10	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	Me	5,6-Me ₂	
12.11	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	Me	-	
12.12	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	Et	-	

Tab lle 13: V rbindungen der Formel (Io)



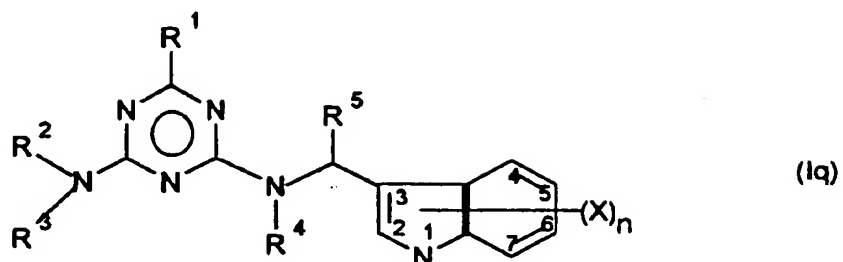
Nr.	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	(X) _n	Phys. Daten
13.1	CHOCH ₃ CH ₃	H	H	H	Me	-	
13.2	CHOCH ₃ CH ₃	H	H	H	Et	-	
13.3	i-Pr	H	H	H	i-Pr	-	
13.4	i-Pr	H	H	Me	i-Pr	-	
13.5	CF ₂ CF ₃	H	H	H	Me	-	
13.6	CF ₂ CF ₃	H	H	H	Et	-	
13.7	CH ₂ CH(CH ₃) ₂	H	H	H	Me	-	

Tabell 14: Verbindungen der Formel (Ip)



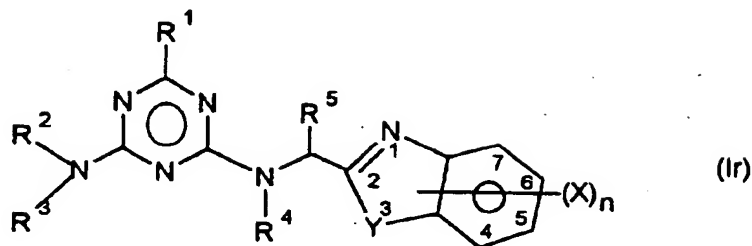
Nr.	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	(X) _n	Phys. Daten
14.1	CH ₂ F	H	H	H	Me	-	
14.2	CCl ₃	H	H	H	Me	6-OCH ₃	
14.3	CF ₃	H	H	H	Me	6-OCH ₃	
14.4	i-Pr	H	H	H	Me	6-Me	
14.5	i-Pr	H	H	H	Me	-	
14.6	i-Pr	H	H	H	Me	6-OCH ₃	
14.7	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	Me	-	
14.8	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	Me	7-CH ₃	
14.9	c-Pr	H	H	H	Me	-	

Tabell 15: Verbindungen der Formel (Iq)



Nr.	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	(X) _n	Phys. Daten
15.1	c-Pr	H	H	H	Me	1-Me	
15.2	c-Pr	H	H	H	Et	1-Me	
15.3	c-Pr	H	H	H	Me	1-Et	
15.4	c-C ₆ H ₁₀	H	H	H	Me	1-Me	
15.5	CF(CH ₃) ₂	H	H	H	Me	1-Me	

Tabelle 16: Verbindungen der Formel (Ir)



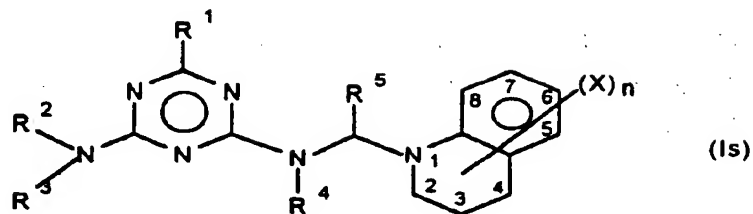
Nr.	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	Y	(X) _n	Phys. Daten
16.1	i-Pr	H	H	H	Me	O	5-Me	NMR, siehe Ende Tabelle
16.2	i-Pr	H	H	H	Me	S	-	NMR, siehe Ende Tabelle
16.3	i-Pr	H	H	H	Me	NCH ₃	-	NMR, siehe Ende Tabelle
16.4	i-Pr	H	H	H	Me	O	4,6-Me ₂	NMR, siehe Ende Tabelle
16.5	i-Pr	H	H	H	Me	S	5-Me	NMR, siehe Ende Tabelle
16.6	i-Pr	H	H	H	Me	O	6-t-Bu	NMR, siehe Ende Tabelle
16.7	i-Pr	H	H	H	Me	O	5,6-(CH ₂) ₄	NMR, siehe Ende Tabelle

NMR-Daten zu einigen Beispielen:

zu Beispiel 16.1: ¹H-NMR (CDCl₃): δ = 1,2 (d, 6H); 1,6 (d, 3H); 2,4 (s, 3H);
5,4 (m, 1H); 7,2 (d, 1H); 7,5 (s, 1H); 7,6 (d, 1H)

- zu Beispiel 16.2: $^1\text{H-NMR}$ (DMSO-d_6): $\delta = 1,2$ (d, 6H); 1,6 (d, 3H); 5,5 (m, 1H); 7,2 (m, 2H); 8,0 (m, 2H)
- zu Beispiel 16.3: $^1\text{H-NMR}$ (DMSO-d_6): $\delta = 1,1$ (d, 6H); 1,6 (d, 3H); 3,8 (s, 3H); 7,2 (m, 2H); 7,5 (m, 2H)
- zu Beispiel 16.4: $^1\text{H-NMR}$ (DMSO-d_6): $\delta = 1,2$ (d, 6H); 1,6 (d, 3H); 2,4 (s, 3H); 2,4 (s, 3H); 5,4 (m, 1H); 7,0 (s, 1H); 7,3 (s, 1H)
- zu Beispiel 16.5: $^1\text{H-NMR}$ (DMSO_6): $\delta = 1,2$ (d, 6H); 1,6 (d, 3H); 2,4 (s, 3H); 5,4 (m, 1H); 7,3 (d, 1H); 7,8 (m, 2H)
- zu Beispiel 16.6: $^1\text{H-NMR}$ (DMSO-d_6): $\delta = 1,2$ (d, 6H); 1,3 (s, 9H); 1,6 (d, 3H); 5,4 (m, 1H); 7,4 (d, 1H); 7,7 (s, 1H); 7,8 (d, 1H)
- zu Beispiel 16.8: $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3): $\delta = 1,2$ (d, 6H); 1,6 (d, 3H); 5,1 (m, 1H); 7,2 (s, 1H); 7,4 (s, 1H)

Tabelle 17: Verbindungen d r Form I (Is)



Nr.	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	(X) _n	Phys. Daten
17.1	CH ₃	H	H	H	Me	-	
17.2	i-Pr	H	H	H	Me	-	
17.3	i-Pr	H	H	H	Me	6-Me	
17.4	CF ₂ CHF ₂	H	H	H	Et	-	
17.5	CCl(CH ₃) ₂	H	H	H	Et	-	

B. Formulierungsbeispiel

- a) Ein Stäubemittel wird erhalten, indem man 10 Gew.-Teile einer Verbindung der Formel (I) und 90 Gew.-Teile Talkum als Inertstoff mischt und in einer Schlagmühle zerkleinert.
- b) Ein in Wasser leicht dispergierbares, benetzbares Pulver wird erhalten, indem man 25 Gewichtsteile einer Verbindung der Formel (I), 64 Gewichtsteile kaolinhaltigen Quarz als Inertstoff, 10 Gewichtsteile ligninsulfonsaures Kalium und 1 Gew.-Teil oleoymethyltaurinsaures Natrium als Netz- und Dispergiermittel mischt und in einer Stiftmühle mahlt.
- c) Ein in Wasser leicht dispergierbares Dispersionskonzentrat wird erhalten, indem man 20 Gewichtsteile einer Verbindung der Formel (I) mit 6 Gew.-Teilen Alkylphenolpolyglykoether ([®]Triton X 207), 3 Gew.-Teilen Isotridecanolpolyglykoether (8 EO) und 71 Gew.-Teilen paraffinischem Mineralöl (Siedebereich z.B. ca. 255 bis über 277°C) mischt und in einer Reibkugelmühle auf eine Feinheit von unter 5 Mikron vermahlt.
- d) Ein emulgierbares Konzentrat wird erhalten aus 15 Gew.-Teilen einer Verbindung der Formel (I), 75 Gew.-Teilen Cyclohexanon als Lösungsmittel und 10 Gew.-Teilen oxethyliertes Nonylphenol als Emulgator.
- e) Ein in Wasser dispergierbares Granulat wird erhalten indem man
- | | | |
|----|---------------|----------------------------------|
| 75 | Gewichtsteile | einer Verbindung der Formel (I), |
| 10 | " | ligninsulfonsaures Calcium, |
| 5 | " | Natriumlaurylsulfat, |
| 3 | " | Polyvinylalkohol und |
| 7 | " | Kaolin |

mischt, auf einer Stiftmühle mahlt und das Pulver in einem Wirbelbett durch Aufsprühen von Wasser als Granulierflüssigkeit granuliert.

- f) Ein in Wasser dispergierbares Granulat wird auch erhalten, indem man 25 Gewichtsteile einer Verbindung der Formel (I),

5 " 2,2'-dinaphthylmethan-6,6'-disulfonsaures Natrium

2 " oleoymethyltaurinsaures Natrium,

1 Gewichtsteil Polyvinylalkohol,

17 Gewichtsteile Calciumcarbonat und

50 " Wasser

auf einer Kolloidmühle homogenisiert und vorzerkleinert, anschließend auf einer Perlmühle mahlt und die so erhaltene Suspension in einem Sprühturm mittels einer Einstoffdüse zerstäubt und trocknet.

C. Biologisch Beispiele

1. Unkrautwirkung im Voraufbau

Samen bzw. Rhizomstücke von mono- und dikotylen Unkrautpflanzen werden in Plastiktöpfen in sandiger Lehmerde ausgelegt und mit Erde abgedeckt. Die in Form von benetzbaren Pulvern oder Emulsionskonzentraten formulierten erfindungsgemäßen Verbindungen werden dann als wäßrige Suspension bzw. Emulsion mit einer Wasseraufwandmenge von umgerechnet 600 bis 800 l/ha in unterschiedlichen Dosierungen auf die Oberfläche der Abdeckerde appliziert.

Nach der Behandlung werden die Töpfe im Gewächshaus aufgestellt und unter guten Wachstumsbedingungen für die Unkräuter gehalten. Die optische Bonitur der Pflanzen- bzw. Aufbauschiäden erfolgt nach dem Aufbauen der Versuchspflanzen nach einer Versuchszeit von 3 bis 4 Wochen im Vergleich zu unbehandelten Kontrollen. Wie die Testergebnisse zeigen, weisen die erfindungsgemäßen Verbindungen eine gute herbizide Voraufbauwirksamkeit gegen ein breites Spektrum von Ungräsern und Unkräutern auf. Beispielsweise zeigen im Test die Beispiele Nr. 2.5, 2.10, 2.17, 2.18, 2.20, 2.30, 2.68, 2.70, 2.71, 2.72, 3.8, 3.10, 6.1, 6.7, 6.9, 6.16, 10.2, 10.8, 16.1 und 16.2 der Tabellen 2, 3, 6, 10 und 16 sehr gute herbizide Wirkung gegen Schadpflanzen wie *Stellaria media*, *Lolium multiflorum*, *Matricaria inodora*, *Echinochloa crus-galli*, *Sinapis alba*, *Avena sativa*, *Cyperus esculentus* und *Cyperus iria* im Voraufbauverfahren bei einer Aufwandmenge von 1,25 kg oder weniger Aktivsubstanz pro Hektar.

2. Unkrautwirkung im Nachaufbau

Samen bzw. Rhizomstücke von mono- und dikotylen Unkräutern werden in Plastiktöpfen in sandigem Lehmboden ausgelegt, mit Erde abgedeckt und im Gewächshaus unter guten Wachstumsbedingungen angezogen. Drei Wochen

nach der Aussaat werden die Versuchspflanzen im Dreiblattstadium behandelt. Die als Spritzpulver bzw. als Emulsionskonzentrate formulierten erfindungsgemäßen Verbindungen werden in verschiedenen Dosierungen mit einer Wasseraufwandmenge von umgerechnet 600 bis 800 l/ha auf die grünen Pflanzenteile gesprüht. Nach ca. 3 bis 4 Wochen Standzeit der Versuchspflanzen im Gewächshaus unter optimalen Wachstumsbedingungen wird die Wirkung der Präparate optisch im Vergleich zu unbehandelten Kontrollen bonitiert. Die erfindungsgemäßen Mittel weisen auch im Nachauflauf eine gute herbizide Wirksamkeit gegen ein breites Spektrum wirtschaftlich wichtiger Ungräser und Unkräuter auf. Beispielsweise zeigen im Test die Beispiele Nr. 2.5, 2.10, 2.17, 2.18, 3.10, 6.1, 6.2, 6.7, 6.9, 16.1 und 16.2 der Tabellen 2, 3, 6 und 16 sehr gute herbizide Wirkung gegen Schadpflanzen wie *Sinapis alba*, *Echinochloa crus-galli*, *Lolium multiflorum*, *Stellaria media*, *Matricaria inodora*, *Cyperus esculentus*, *Cyperus iria* und *Avena sativa* im Nachauflaufverfahren bei einer Aufwandmenge von 1,25 kg und weniger Aktivsubstanz pro Hektar.

3. Wirkung auf Schadpflanzen in Reis

Verpflanzter und gesäter Reis sowie typische Reisunkräuter und -ungräser werden im Gewächshaus bis zum Dreiblattstadium (*Echinochloa* 1,5-Blatt) unter Paddyreis-Bedingungen (Anstauhöhe des Wassers: 2 - 3 cm) in geschlossenen Plastiktöpfen angezogen. Danach erfolgt die Behandlung mit den erfindungsgemäßen Verbindungen. Hierzu werden die formulierten Wirkstoffe in Wasser suspendiert, gelöst bzw. emulgiert und mittels Gießapplikation in das Anstauwasser der Test-pflanzen in unterschiedlichen Dosierungen ausgebracht. Nach der so durchgeführten Behandlung werden die Versuchspflanzen im Gewächshaus unter optimalen Wachstumsbedingungen aufgestellt und während der gesamten Versuchszeit so gehalten.

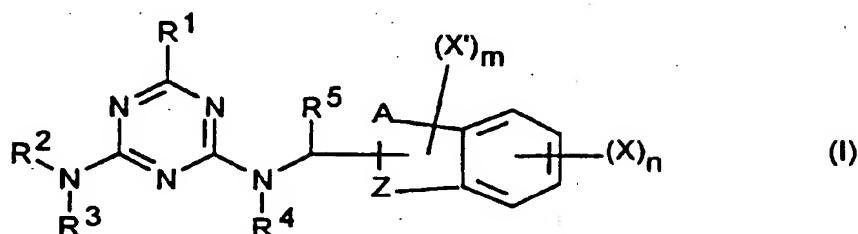
Etwa drei Wochen nach der Applikation erfolgt die Auswertung mittels optischer Bonitur der Pflanzenschäden im Vergleich zu unbehandelten Kontrollen. Die erfindungsgemäßen Verbindungen weisen sehr gute herbizide Wirkung gegen Schadpflanzen auf. Beispielsweise zeigen Verbindungen der Beispiele 2.10, 2.17, 2.18, 2.20, 2.30, 2.68, 2.70, 2.71, 2.72, 3.10, 6.1, 6.7, 6.16, 10.2 und 10.8 der Tabellen 2, 3, 6 bzw. 10 im Test sehr gute Wirkung gegen Schadpflanzen, die typisch für Reiskulturen sind, wie z.B. *Cyperus monti*, *Echinochloa crus-galli* und *Sagittaria pygmaea*.

4. Kulturpflanzenverträglichkeit

In weiteren Versuchen im Gewächshaus werden Samen einer größeren Anzahl von Kulturpflanzen und Unkräutern in sandigem Lehmboden ausgelegt und mit Erde abgedeckt. Ein Teil der Töpfe wird sofort wie unter Abschnitt 1 beschrieben behandelt, die übrigen im Gewächshaus aufgestellt, bis die Pflanzen zwei bis drei echte Blätter entwickelt haben und dann wie unter Abschnitt 2 beschrieben mit den erfindungsgemäßen Substanzen der Formel (I) in unterschiedlichen Dosierungen besprüht. Vier bis fünf Wochen nach der Applikation und Standzeit im Gewächshaus wird mittels optischer Bonitur festgestellt, daß die erfindungsgemäßen Verbindungen zweikeimblättrige Kulturen wie z.B. Soja, Baumwolle, Raps, Zuckerrüben und Kartoffeln im Vor- und Nachauflaufverfahren selbst bei hohen Wirkstoffdosierungen ungeschädigt lassen. Einige Substanzen schonen darüber hinaus auch Gramineen-Kulturen wie z.B. Gerste, Weizen, Roggen, Sorghum-Hirsen, Mais oder Reis. Die Verbindungen der Formel (I) zeigen teilweise eine hohe Selektivität und eignen sich deshalb zur Bekämpfung von unerwünschten Pflanzenwuchs in landwirtschaftlichen Kulturen.

Patentansprüche:

1. Verbindungen der Formel (I) und deren Salze,



worin

R¹ (C₁-C₆)Alkyl;

das unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, Cyano, Nitro, Thiocyanato, Hydroxy, (C₁-C₄)-Alkoxy, (C₁-C₄)Alkylthio, (C₁-C₄)Alkylsulfinyl, (C₁-C₄)Alkylsulfonyl, (C₂-C₄)Alkenyl, (C₂-C₄)Alkynyl, Phenyl, das unsubstituiert oder substituiert ist, und (C₃-C₉)Cycloalkyl, das unsubstituiert oder substituiert ist, und Heterocyclyl mit 3 bis 6 Ringatomen und 1 bis 3 Heteroringatomen aus der Gruppe N, O und S, wobei der Ring unsubstituiert oder substituiert ist, substituiert ist, oder

einen carbocyclischen oder heterocyclischen Rest mit 3 bis 6 Ringatomen, der unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, Nitro, Cyano, Thiocyanato und einen Rest der Formel B¹-Y¹, wobei B¹ und Y¹ wie weiter unten definiert sind, substituiert ist, wobei Substituenten paarweise auch einen carbocyclischen oder heterocyclischen Ring mit 3 bis 6 Ringatomen bilden können, der unsubstituiert oder substituiert ist,

R² und R³ jeweils unabhängig voneinander Wasserstoff, Amino oder Alkylamino oder Dialkylamino mit jeweils 1 bis 6 C-Atomen im Alkylrest, einen acyclischen oder cyclischen Kohlenwasserstoffrest oder Kohlenwasserstoffoxyrest mit jeweils 1 bis 10 C-Atomen, oder einen

Heterocyclrest, Heterocyclloxyrest oder Heterocycllaminorest mit jeweils 3 bis 6 Ringatomen und 1 bis 3 Heteroringatomen aus der Gruppe N, O und S, wobei jeder der fünf letztgenannten Reste unsubstituiert oder substituiert ist, oder einen Acylrest oder

R^2 und R^3 gemeinsam mit dem Stickstoffatom der Gruppe NR^2R^3 einen heterocyclischen Rest mit 3 bis 6 Ringatomen und 1 bis 4

Heteroringatomen, wobei neben dem N-Atom die gegebenenfalls weiteren Heteroringatome aus der Gruppe N, O und S ausgewählt sind und der Rest unsubstituiert oder substituiert ist,

R^4 Wasserstoff, Amino, Alkylamino oder Dialkylamino mit jeweils 1 bis 6 C-Atomen im Alkylrest, einen acyclischen oder cyclischen Kohlenwasserstoffrest oder Kohlenwasserstoffoxyrest mit jeweils 1 bis 10 C-Atomen, oder einen Heterocyclrest, Heterocyclloxyrest oder Heterocycllaminorest mit jeweils 3 bis 6 Ringatomen und 1 bis 3 Heteroringatomen aus der Gruppe N, O und S, wobei jeder der fünf letztgenannten Reste unsubstituiert oder substituiert ist, oder einen Acylrest,

R^5 Wasserstoff, Nitro, Cyano, Thiocyanato oder einen Rest der Formel $-B^2-Y^2$, wobei B^2 und Y^2 wie weiter unten definiert sind,

A-Z eine divalente Brücke der Formel

$-(CH_2)_a-$,	worin a die ganze Zahl 2, 3 oder 4 ist,
$-W^1-(CH_2)_b-W^2-$,	worin b die ganze Zahl 1 oder 2 ist und W^1 , W^2 unabhängig voneinander NR, O oder S bedeuten,
$-CH_2CH_2CH_2-W^3-$,	worin W^3 NR, O oder S bedeutet,
$-W^4-CH=CH-W^5-$,	worin W^4 , W^5 unabhängig voneinander NR, O oder S bedeuten,
$-CH=CH-CH_2-W^6-$,	worin W^6 eine Gruppe der Formel NR, O oder S bedeutet, oder
$-CH_2CH_2NR-$,	
$-W^7-CH=N-$,	worin W^7 eine Gruppe NR, O, oder S bedeutet,

$-W^8CH_2-N=N-$, worin W^8 ein Gruppe NR, O oder S bedeutet,
 $-CH=CH-N=N-$,
 $-N=CH-CH=N-$,
 $-CH=CH-CH_2-$,
 $-CH=CH-CH=CH-$ oder
 $-CH=CH-NR-$

wobei R in den genannten Gruppen NR jeweils H oder (C_1-C_4) Alkyl bedeutet,

$(X')_m$ m Substituenten X' und dabei X' jeweils unabhängig voneinander Halogen, (C_1-C_6) Alkyl, (C_2-C_6) Alkenyl, (C_2-C_6) Alkynyl, (C_1-C_6) Alkoxy, (C_2-C_6) Alkenyloxy, (C_2-C_6) Alkinyloxy, $[(C_1-C_4)$ Alkyl]-carbonyl, $[(C_1-C_4)$ Alkoxy]-carbonyl oder $[(C_1-C_4)$ Alkylthio]-carbonyl, wobei die kohlenwasserstoffhaltigen Teile in den letztgenannten 9 Resten unsubstituiert oder substituiert sind, oder die Oxogruppe,

$(X)_n$ n Substituenten X und dabei X jeweils unabhängig voneinander Halogen, Nitro, Cyano, (C_1-C_6) Alkyl, (C_2-C_6) Alkenyl, (C_2-C_6) Alkynyl, (C_1-C_6) Alkoxy, (C_2-C_6) Alkenyloxy, (C_2-C_6) Alkinyloxy, $[(C_1-C_4)$ Alkyl]-carbonyl, $[(C_1-C_4)$ Alkoxy]-carbonyl oder $[(C_1-C_4)$ Alkylthio]-carbonyl, wobei die kohlenwasserstoffhaltigen Teile in den letztgenannten 9 Resten unsubstituiert oder substituiert sind, oder einen Rest der Formel $-B^3-Y^3$, wobei B^3 und Y^3 wie unten definiert sind,

oder zwei benachbarte Reste X gemeinsam einen ankondensierten Cyclus mit 4 bis 6 Ringatomen, der carbocyclisch ist oder Heteroringatome aus der Gruppe O, S und N enthält und der unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C_1-C_4) Alkyl und Oxo substituiert ist,

B^1, B^2, B^3 jeweils unabhängig voneinander eine direkte Bindung oder eine divalente Gruppe der Formel $-O-$, $-S(O)_p-$, $-S(O)_p-O-$, $-O-S(O)_p-$, $-CO-$, $-O-CO-$, $-CO-O-$, $-NR'-$, $-O-NR'-$, $-NR'-O-$, $-NR'-CO-$ oder $-CO-NR'-$, wobei $p = 0, 1$ oder 2 ist und R' Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 6 C-Atomen, Phenyl, Benzyl, Cycloalkyl mit 3 bis 6 C-Atomen oder Alkanoyl mit 1 bis

- 6 C-Atomen ist,
- Y^1, Y^2 jeweils unabhängig voneinander H oder einen acyclischen Kohlenwasserstoffrest oder einen cyclischen Kohlenwasserstoffrest mit 3 bis 8 C-Atomen oder einen heterocyclischen Rest mit 3 bis 9 Ringatomen und 1 bis 3 Heteroringatomen aus der Gruppe N, O und S, wobei jeder der drei letztgenannten Reste unsubstituiert oder substituiert ist,
- Y^3 einen aromatischen, gesättigten oder teilgesättigten carbocyclischen oder heterocyclischen Rest bedeutet, wobei der cyclische Rest substituiert oder unsubstituiert ist,
- m eine ganze Zahl von Null bis zur Anzahl der Wasserstoffatome im Grundkörper der divalenten Brücke,
- n 0, 1, 2, 3 oder 4,
- bedeuten.

2. Verbindungen der Formel (I) oder deren Salze nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß

R^1 (C_1-C_4) Alkyl,

das unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C_1-C_4) Alkoxy, (C_1-C_4) Alkylthio, (C_1-C_4) Alkylsulfonyl, Phenyl, das unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C_1-C_4) Alkyl und (C_1-C_4) Haloalkyl, (C_1-C_4) Alkoxy, (C_1-C_4) Haloalkoxy, (C_1-C_4) Alkylthio, Amino, Mono- und Di- $[(C_1-C_4)$ alkyl]amino, (C_1-C_4) Alkanoylamino, Benzoylamino, Nitro, Cyano, $[(C_1-C_4)$ Alkyl]carbonyl, Formyl, Carbamoyl, Mono- und Di- $[(C_1-C_4)$ alkyl]aminocarbonyl und (C_1-C_4) Alkylsulfonyl substituiert ist, und (C_3-C_9) Cycloalkyl, das unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste (C_1-C_4) Alkyl substituiert ist, und Heterocyclyl mit 3 bis 6 Ringatomen und 1 bis 3 Heteroringatomen aus der Gruppe N, O und S, wobei der Ring unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C_1-C_4) Alkyl und Oxo substituiert ist,

substituiert ist, oder

(C₃-C₇)Cycloalkyl, (C₃-C₇)Cycloalkenyl oder einen heterocyclischen Rest mit 3 bis 6 Ringatomen und 1 bis 3 Heteroringatomen aus der Gruppe N, O und S, wobei der Cycloalkylrest oder der heterocyclische Rest jeweils unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, Nitro, Cyano, Thiocyanato und einen Rest der Formel B¹-Y¹, wobei B¹ und Y¹ wie weiter unten definiert sind, substituiert ist und/oder Substituenten aufweist, die paarweise einen ankondensierten Benzolring oder einen ankondensierten oder in Spiroform verknüpften Ring aus der Gruppe (C₃-C₇)Cycloalkyl, (C₃-C₇)Cycloalkenyl und einen heterocyclischen Ring mit 3 bis 6 Ringatomen bilden können, der unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C₁-C₄)Alkyl, (C₁-C₄)Haloalkyl und Oxo substituiert ist, oder Phenyl, das unsubstituiert oder substituiert ist,

R² und R³ jeweils unabhängig voneinander Wasserstoff, Amino oder Alkylamino oder Dialkylamino mit jeweils 1 bis 4 C-Atomen im Alkylrest, einen acyclischen oder cyclischen Kohlenwasserstoffrest oder Kohlenwasserstoffoxyrest mit jeweils 1 bis 6 C-Atomen oder einen Heterocyclylrest, Heterocycliloxyrest oder Heterocyclylaminorest mit jeweils 3 bis 6 Ringatomen und 1 bis 3 Heteroringatomen aus der Gruppe N, O und S, wobei jeder der fünf letztgenannten Reste unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C₁-C₄)Alkoxy, (C₁-C₄)Haloalkoxy, (C₁-C₄)Alkylthio, (C₂-C₄)Alkenyl, (C₂-C₄)Alkinyl, (C₂-C₄)Alkenyloxy, (C₂-C₄)Alkinyloxy, Hydroxy, Amino, Acylamino, Mono- und Dialkylamino, Nitro, Carboxy, Cyano, Azido, [(C₁-C₄)Alkoxy]-carbonyl, [(C₁-C₄)Alkyl]-carbonyl, Formyl, Carbamoyl, Mono- und Di-[(C₁-C₄)alkyl]-aminocarbonyl, (C₁-C₄)Alkylsulfinyl, (C₁-C₄)Haloalkylsulfinyl, (C₁-C₄)Alkylsulfonyl, (C₁-C₄)Haloalkylsulfonyl und, im Falle cyclischer Reste, auch (C₁-C₄)Alkyl und (C₁-C₄)Haloalkyl substituiert ist, oder einen Acylrest oder

R^2 und R^3 gemeinsam mit dem Stickstoffatom der Gruppe NR^2R^3 einen heterocyclischen Rest mit 3 bis 6 Ringatomen und 1 bis 2

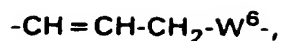
Heteroringatomen, wobei neben dem N-Atom das gegebenenfalls weitere Heteroringatom aus der Gruppe N, O und S ausgewählt ist und der Rest unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C_1-C_4) Alkyl und Oxo substituiert ist,

- R^4 Wasserstoff, Amino, Alkylamino oder Dialkylamino mit jeweils 1 bis 6 C-Atomen im Alkylrest, einen acyclischen oder cyclischen Kohlenwasserstoffrest oder Kohlenwasserstoffoxyrest mit jeweils 1 bis 6 C-Atomen oder einen Heterocyclylrest, Heterocyclylxyrest oder Heterocyclylaminorest mit jeweils 3 bis 6 Ringatomen und 1 bis 3 Heteroringatomen aus der Gruppe N, O und S, wobei jeder der fünf letztgenannten Reste unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C_1-C_4) Alkoxy, (C_1-C_4) Haloalkoxy, (C_1-C_4) Alkylthio, (C_2-C_4) Alkenyl, (C_2-C_4) Alkynyl, (C_2-C_4) Alkenyloxy, (C_2-C_4) Alkinyloxy, Hydroxy, Amino, Acylamino, Mono- und Dialkylamino, Nitro, Carboxy, Cyano, Azido, $[(C_1-C_4)Alkoxy]$ -carbonyl, $[(C_1-C_4)Alkyl]$ -carbonyl, Formyl, Carbamoyl, Mono- und Di- $[(C_1-C_4)alkyl]$ -aminocarbonyl, (C_1-C_4) Alkylsulfinyl, (C_1-C_4) Haloalkylsulfinyl, (C_1-C_4) Alkylsulfonyl, (C_1-C_4) Haloalkylsulfonyl und, im Falle cyclischer Reste, auch (C_1-C_4) Alkyl und (C_1-C_4) Haloalkyl substituiert ist, oder einen Acylrest,

- R^5 Wasserstoff, Nitro, Cyano, Thiocyanato oder einen Rest der Formel $-B^2-Y^2$, wobei B^2 und Y^2 wie weiter unten definiert sind,

A-Z eine divalente Brücke der Formel

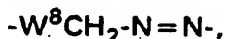
- | | |
|------------------------|---|
| $-(CH_2)_a-$, | worin a die ganze Zahl 2, 3 oder 4 ist, |
| $-W^1-(CH_2)_b-W^2-$, | worin b die ganze Zahl 1 oder 2 ist und W^1 , W^2 unabhängig voneinander S oder O bedeuten, |
| $-CH_2CH_2CH_2-W^3-$, | worin W^3 NR, O oder S bedeutet, |
| $-W^4-CH=CH-W^5-$, | worin W^4 , W^5 unabhängig voneinander S oder O bedeuten, |



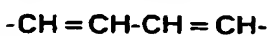
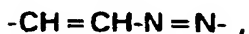
worin W^6 eine Gruppe der Formel S oder O bedeutet, oder



worin W^7 eine Gruppe NR, O oder S bedeutet,



worin W^8 eine Gruppe NR, O oder S bedeutet,



oder



wobei R in den Gruppen NR jeweils H, Methyl oder Ethyl bedeutet,

$(\text{X}')_m$ m Substituenten X' und dabei X' jeweils unabhängig voneinander Halogen, (C_1-C_6) Alkyl, (C_2-C_6) Alkenyl, (C_2-C_6) Alkynyl, (C_1-C_6) Alkoxy, (C_2-C_6) Alkenyloxy, (C_2-C_6) Alkinyloxy, $[(\text{C}_1-\text{C}_4)\text{Alkyl}]$ -carbonyl, $[(\text{C}_1-\text{C}_4)\text{Alkoxy}]$ -carbonyl oder $[(\text{C}_1-\text{C}_4)\text{Alkylthio}]$ -carbonyl, wobei die kohlenwasserstoffhaltigen Teile in den letztgenannten 9 Resten unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C_1-C_4) Alkoxy und (C_1-C_4) Alkylthio substituiert sind, oder die Oxogruppe,

$(\text{X})_n$ n Substituenten X und dabei X jeweils unabhängig voneinander Halogen, Nitro, Cyano, (C_1-C_6) Alkyl, (C_1-C_6) Alkoxy, (C_1-C_4) Alkylcarbonyl, (C_1-C_4) Alkyloxycarbonyl oder (C_1-C_4) Alkylthiocarbonyl, wobei die letztgenannten fünf Reste unsubstituiert oder durch Halogen oder (C_1-C_4) Alkoxy substituiert sind, einen Rest der Formel $-\text{B}^3-\text{Y}^3$, wobei B^3 und Y^3 wie unten definiert sind, oder zwei benachbarte Reste X gemeinsam einen ankondensierten Cyclus mit 4 bis 6 Ringatomen, der carbocyclisch ist oder Heteroringatome aus der Gruppe O, S und N enthält und der unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C_1-C_4) Alkyl und Oxo substituiert ist,

$\text{B}^1, \text{B}^2, \text{B}^3$ jeweils unabhängig voneinander eine direkte Bindung oder eine

divalente Gruppe der Form I -O-, -S-, -CO-, -O-CO-, -CO-O-, -NR'-, -NR'-CO- oder -CO-NR'-, wobei R' H oder (C₁-C₄)Alkyl ist,

Y¹, Y² jeweils unabhängig voneinander H oder einen acyclischen Kohlenwasserstoffrest mit 1 bis 6 C-Atomen, einen cyclischen Kohlenwasserstoffrest mit 3 bis 6 C-Atomen oder einen heterocyclischen Rest mit 3 bis 9 Ringatomen und 1 bis 3 Heteroringatomen aus der Gruppe N, O und S, wobei jeder der drei letztgenannten Reste unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C₁-C₄)Alkoxy, (C₁-C₄)Haloalkoxy, (C₁-C₄)Alkylthio, (C₂-C₄)Alkenyl, (C₂-C₄)Alkynyl, (C₂-C₄)Alkenyloxy, (C₂-C₄)Alkynyloxy, Hydroxy, Amino, Acylamino, Mono- und Dialkylamino, Nitro, Carboxy, Cyano, Azido, [(C₁-C₄)Alkoxy]-carbonyl, [(C₁-C₄)Alkyl]-carbonyl, Formyl, Carbamoyl, Mono- und Di-[(C₁-C₄)alkyl]-aminocarbonyl, (C₁-C₄)Alkylsulfinyl, (C₁-C₄)Haloalkylsulfinyl, (C₁-C₄)Alkylsulfonyl, (C₁-C₄)Haloalkylsulfonyl und, im Falle cyclischer Reste, auch (C₁-C₄)Alkyl und (C₁-C₄)Haloalkyl substituiert ist,

Y³ (C₃-C₆)Cycloalkyl, das unsubstituiert oder durch Reste aus der Gruppe (C₁-C₄)Alkyl und (C₁-C₄)Haloalkyl substituiert ist, oder Phenyl, das unsubstituiert oder durch Reste aus der Gruppe Halogen, (C₁-C₄)Alkyl, (C₁-C₄)Haloalkyl und (C₁-C₄)Alkoxy substituiert ist,

m 0, 1 oder 2,

n 0, 1, 2, 3 oder 4,

bedeuten.

3. Verbindungen der Formel (I) oder deren Salze nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß

R¹ (C₁-C₄)Alkyl,

das unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C₁-C₄)Alkoxy, (C₁-C₄)Alkylthio und Phenyl, das unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C₁-C₄)Alkyl und (C₁-C₄)Haloalkyl, (C₁-C₄)Alkoxy, (C₁-

C_4)Haloalkoxy, (C_1-C_4) Alkylthio, Nitro, Cyano, $[(C_1-C_2)Alkyl]carbonyl$, Formyl, Carbamoyl, Mono- und Di- $[(C_1-C_2)alkyl]aminocarbonyl$ und $(C_1-C_4)Alkylsulfonyl$ und $(C_3-C_7)Cycloalkyl$, das unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste $(C_1-C_4)Alkyl$ substituiert ist,

substituiert ist, oder

$(C_3-C_7)Cycloalkyl$ oder einen heterocyclischen Rest mit 3 bis 6 Ringatomen und 1 oder 2 Heteroringatomen aus der Gruppe N, O und S, wobei der Cycloalkylrest oder der heterocyclische Rest jeweils unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, Nitro, Cyano, Thiocyanato und einen Rest der Formel B^1-Y^1 , wobei B^1 und Y^1 wie weiter unten definiert sind, substituiert ist und/oder Substituenten aufweist, die paarweise einen in Spiroform verknüpften Ring aus der Gruppe $(C_3-C_7)Cycloalkyl$ bilden können, der unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, $(C_1-C_4)Alkyl$, $(C_1-C_4)Haloalkyl$ und Oxo substituiert ist,

R^2 und R^3 unabhängig voneinander Wasserstoff, Amino, Formyl, $(C_1-C_4)Alkyl$, Cyano- $(C_1-C_4)alkyl$, $(C_1-C_4)Alkylamino$, Di- $[(C_1-C_4)alkyl]-amino$, Halo- $(C_1-C_4)alkyl$, Hydroxy- $(C_1-C_4)alkyl$, $(C_1-C_4)Alkoxy-(C_1-C_4)alkyl$, Halo- $(C_1-C_4)alkoxy-(C_1-C_4)alkyl$, $(C_2-C_6)Alkenyl$, Halo- $(C_2-C_6)alkenyl$, $(C_2-C_6)Alkynyl$, Halo- $(C_2-C_6)alkynyl$, $(C_1-C_4)Alkylamino-(C_1-C_4)alkyl$, Di- $[(C_1-C_4)alkyl]-amino-(C_1-C_4)alkyl$, $(C_3-C_9)Cycloalkylamino-(C_1-C_4)alkyl$, $(C_3-C_9)Cycloalkyl$, $(C_3-C_9)Heterocyclyl-(C_1-C_4)alkyl$, wobei die cyclischen Gruppen in den letztgenannten 3 Resten unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe $(C_1-C_4)Alkyl$, Halogen und Cyano substituiert sind, oder

Phenyl, Phenoxy, Phenylcarbonyl, Phenoxy-carbonyl, Phenylcarbonyl- $(C_1-C_4)alkyl$, $(C_1-C_4)Alkoxy-carbonyl-(C_1-C_4)alkyl$, $(C_1-C_4)Alkylamino-carbonyl-(C_1-C_4)alkyl$, $(C_1-C_4)Alkyl-carbonyl$, $(C_1-C_4)Alkoxy-carbonyl$, Aminocarbonyl, $(C_1-C_4)Alkylamino-carbonyl$, Phenoxy- $(C_1-C_4)alkyl$, Phenyl- $(C_1-C_4)alkyl$, Heterocyclyl, Heterocyclylamino, Heterocycliloxy,

Heterocyclylthio, oder einen der letztgenannten 17 R¹ ste, der im acyclischen Teil oder im cyclischen Teil durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, Nitro, Cyano, (C₁-C₄)Alkyl, (C₁-C₄)Alkoxy, (C₁-C₄)Alkylthio, (C₁-C₄)Haloalkyl, (C₁-C₄)Haloalkoxy, Formyl, (C₁-C₄)Alkyl-carbonyl, (C₁-C₄)Alkoxy-carbonyl, (C₁-C₄)Alkoxy, substituiert ist, wobei Heterocyclyl in den Resten jeweils 3 bis 9 Ringatome und 1 bis 3 Heteroringatome aus der Gruppe N, O und S enthält, oder

R² und R³ gemeinsam mit dem Stickstoffatom der Gruppe NR²R³ einen heterocyclischen Rest mit 3 bis 6 Ringatomen und 1 bis 2

Heteroringatomen, wobei neben dem N-Atom das gegebenenfalls weitere Heteroringatom aus der Gruppe N, O und S ausgewählt ist und der Rest unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C₁-C₄)Alkyl und Oxo substituiert ist,

R⁴ Wasserstoff, Amino, Formyl, (C₁-C₄)Alkyl, Cyano-(C₁-C₄)alkyl, (C₁-C₄)Alkylamino, Di-[(C₁-C₄)alkyl]-amino, Halo-(C₁-C₄)alkyl, Hydroxy-(C₁-C₄)alkyl, (C₁-C₄)Alkoxy-(C₁-C₄)alkyl, Halo(C₁-C₄)alkoxy-(C₁-C₄)alkyl, (C₂-C₆)Alkenyl, Halo-(C₂-C₆)alkenyl, (C₂-C₆)Alkynyl, Halo-(C₂-C₆)alkynyl, (C₁-C₄)Alkylamino-(C₁-C₄)alkyl, Di-[(C₁-C₄)alkyl]-amino-(C₁-C₄)alkyl, (C₃-C₉)Cycloalkylamino-(C₁-C₄)alkyl, (C₃-C₉)Cycloalkyl, (C₃-C₉)Heterocyclyl-(C₁-C₄)alkyl mit 3 bis 9 Ringgliedern, wobei die cyclischen Gruppen in den letztgenannten 3 Resten unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe (C₁-C₄)Alkyl, Halogen und Cyano substituiert sind, oder Phenyl, Phenoxy, Phenylcarbonyl, Phenoxy-carbonyl, Phenylcarbonyl-(C₁-C₄)alkyl, (C₁-C₄)Alkoxy-carbonyl-(C₁-C₄)alkyl, (C₁-C₄)Alkylamino-carbonyl-(C₁-C₄)alkyl, (C₁-C₄)Alkyl-carbonyl, (C₁-C₄)Alkoxy-carbonyl, Aminocarbonyl, (C₁-C₄)Alkylamino-carbonyl, Phenoxy-(C₁-C₄)alkyl, Phenyl-(C₁-C₄)alkyl, Heterocyclyl, Heterocyclylamino, Heterocycliloxy, Heterocyclylthio, oder einen der letztgenannten 17 Reste, der im acyclischen Teil oder im cyclischen Teil

durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, Nitro, Cyano, (C₁-C₄)Alkyl, (C₁-C₄)Alkoxy, (C₁-C₄)Alkylthio, (C₁-C₄)Haloalkyl, (C₁-C₄)Haloalkoxy, Formyl, (C₁-C₄)Alkyl-carbonyl, (C₁-C₄)Alkoxy-carbonyl, (C₁-C₄)Alkoxy, substituiert ist, wobei Heterocyclyl in den Resten jeweils 3 bis 9 Ringatome und 1 bis 3 Heteroringatome aus der Gruppe N, O und S enthält,

R⁵ Wasserstoff, (C₁-C₄)Alkyl, (C₁-C₄)Haloalkyl oder (C₃-C₇)Cycloalkyl,

A-Z eine divalente Brücke der Formel

-CH₂CH₂-, -CH₂CH₂CH₂-, -CH₂CH₂CH₂CH₂-,
 -S-CH₂S-, -S-CH₂-O-, -O-CH₂-O-,
 -S-CH₂CH₂S-, -S-CH₂CH₂-O-, -O-CH₂CH₂-O-,
 -CH₂CH₂CH₂-NR-, -CH₂CH₂CH₂-O-, -CH₂CH₂CH₂-S-,
 -S-CH=CH-S-, O-CH=CH-O-, -O-CH=CH-S-,
 -CH=CH-CH₂-O-, -CH=CH-CH₂-S,
 -CH₂CH₂NR-,
 -O-CH=N-,
 -S-CH=N-,
 -NR-CH=N-,
 -CH=CH-N=N-,
 -N=CH-CH=N-,
 -CH=CH-CH₂-,
 -CH=CH-CH=CH- oder
 -CH=CH-NR-,

wobei R in den Gruppen NR jeweils H oder Methyl bedeutet,

(X')_m m Substituenten X' und dabei X' jeweils unabhängig voneinander Halogen, (C₁-C₄)Alkyl, (C₂-C₄)Alkenyl, (C₂-C₄)Alkynyl, (C₁-C₄)Alkoxy, (C₂-C₄)Alkenyloxy, (C₂-C₄)Alkynyloxy, [(C₁-C₄)Alkyl]-carbonyl, [(C₁-C₄)Alkoxy]-carbonyl oder [(C₁-C₄)Alkylthio]-carbonyl, wobei die kohlenwasserstoffhaltigen Teile in den letztgenannten 9 Resten unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen substituiert sind, oder die Oxogruppe,

(X)_n n Substituenten X und dabei X jeweils unabhängig voneinander Halogen, Hydroxy, Amino, Nitro, Formyl, Carboxy, Cyano, Thiocyanato, (C₁-C₄)Alkyl, Cyano-(C₁-C₄)alkyl, (C₁-C₄)Alkoxy, (C₁-C₄)Alkylamino, Di-[(C₁-C₄)alkyl]-amino, Halo-(C₁-C₄)alkyl, Hydroxy-(C₁-C₄)alkyl, (C₁-C₄)Alkoxy-(C₁-C₄)alkyl, Halo(C₁-C₄)alkoxy-(C₁-C₄)alkyl, (C₁-C₄)Alkylthio, Halo-(C₁-C₄)alkylthio, (C₂-C₆)Alkenyl, Halo-(C₂-C₆)Alkenyl, (C₂-C₆)Alkynyl, Halo-(C₂-C₆)alkynyl, (C₁-C₄)Alkylamino-(C₁-C₄)alkyl, Di-[(C₁-C₄)alkyl]-amino-(C₁-C₄)alkyl, (C₃-C₉)Cycloalkylamino-(C₁-C₄)alkyl, (C₃-C₉)Cycloalkyl, Heterocyclyl-(C₁-C₄)alkyl mit 3 bis 9 Ringgliedern, wobei die cyclischen Gruppen in den letztgenannten 3 Resten unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe (C₁-C₄)Alkyl, Halogen und Cyano substituiert sind, oder

Phenyl, Phenoxy, Phenylcarbonyl, Phenoxy-carbonyl, Phenylcarbonyl-(C₁-C₄)alkyl, (C₁-C₄)Alkoxy-carbonyl-(C₁-C₄)alkyl, (C₁-C₄)Alkylamino-carbonyl-(C₁-C₄)alkyl, (C₁-C₄)Alkyl-carbonyl, (C₁-C₄)Alkoxy-carbonyl, Aminocarbonyl, (C₁-C₄)Alkylamino-carbonyl, Phenoxy-(C₁-C₄)alkyl, Phenyl-(C₁-C₄)alkyl, Heterocyclyl, Heterocyclylamino, Heterocyclylloxy, Heterocyclylthio oder einen der letztgenannten 17 Reste, der im acyclischen Teil oder im cyclischen Teil durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, Nitro, Cyano, (C₁-C₄)Alkyl, (C₁-C₄)Alkoxy, (C₁-C₄)Alkylthio, (C₁-C₄)Haloalkyl, (C₁-C₄)Haloalkoxy, Formyl, (C₁-C₄)Alkyl-carbonyl, (C₁-C₄)Alkoxy-carbonyl, (C₁-C₄)Alkoxy, substituiert ist, wobei Heterocyclyl in den Resten jeweils 3 bis 9 Ringatome und 1 bis 3 Heteroringatome aus der Gruppe N, O und S enthält, oder

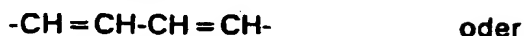
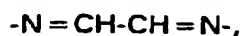
zwei benachbarte Reste X gemeinsam einen ankondensierten Cyclus mit 4 bis 6 Ringatomen, der carbocyclisch ist oder Heteroringatome aus der Gruppe O, S und N enthält und der unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C₁-C₄)Alkyl und Oxo substituiert ist,

- B¹** eine direkte Bindung oder eine divalente Gruppe der Formel -O-, -S-, -CO-, -O-CO-, -CO-O-, -NR'-, -NR'-CO- oder -CO-NR'-, wobei R' H oder (C₁-C₄)Alkyl ist,
- Y¹** H oder einen acyclischen Kohlenwasserstoffrest mit 1 bis 4 C-Atomen, einen cyclischen Kohlenwasserstoffrest mit 3 bis 6 C-Atomen oder einen heterocyclischen Rest mit 3 bis 6 Ringatomen und 1 bis 3 Heteroringatomen aus der Gruppe N, O und S, wobei jeder der drei letztgenannten Reste unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C₁-C₄)Alkoxy, (C₁-C₄)Haloalkoxy, (C₁-C₄)Alkylthio, Hydroxy, Amino, Mono- und Dialkylamino, [(C₁-C₄)Alkoxy]-carbonyl, [(C₁-C₄)Alkyl]-carbonyl, Formyl, Carbamoyl, Mono- und Di-[(C₁-C₄)alkyl]-aminocarbonyl, (C₁-C₄)Alkylsulfinyl, (C₁-C₄)Haloalkylsulfinyl, (C₁-C₄)Alkylsulfonyl, (C₁-C₄)Haloalkylsulfonyl und, im Falle cyclischer Reste, auch (C₁-C₄)Alkyl und (C₁-C₄)Haloalkyl substituiert ist,
- bedeuten.

4. Verbindungen der Formel (I) und deren Salze, nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß

- R¹** (C₁-C₄)Alkyl, (C₁-C₄)Haloalkyl, Benzyl, [(C₃-C₆)Cycloalkyl]-(C₁-C₂)alkyl, (C₃-C₆)Cycloalkyl oder einen heterocyclischen Rest mit 3 bis 6 Ringatomen und 1 oder 2 Heteroringatom aus der Gruppe N und O, vorzugsweise ein Sauerstoffatom als Heteroringatom, wobei der Cycloalkylrest oder der heterocyclische Rest jeweils unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, Nitro, Cyano, Thiocyanato und einen Rest der Formel B¹-Y¹, wobei B¹ und Y¹ wie weiter unten definiert sind, substituiert ist und/oder Substituenten aufweist, die paarweise einen in Spiroform verknüpften Ring aus der Gruppe (C₃-C₇)Cycloalkyl bilden können, der unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C₁-C₄)Alkyl, (C₁-C₄)Haloalkyl und Oxo substituiert ist,

- R^2 und R^3 unabhängig voneinander Wasserstoff, Amino, Formyl, (C_1-C_4) Alkyl, (C_1-C_4) Alkoxy- (C_1-C_4) alkyl, (C_3-C_6) Alkenyl, (C_3-C_6) Alkynyl, (C_1-C_4) Alkylamino- (C_1-C_4) alkyl, Di- $[(C_1-C_4)$ alkyl]-amino- (C_1-C_4) alkyl oder Phenyl, Phenyl- (C_1-C_4) alkyl, Phenylcarbonyl oder Phenoxy-carbonyl oder einen der letztgenannten vier Reste, der im Phenylteil bis zu dreifach durch Reste aus der Gruppe Halogen, (C_1-C_4) Alkyl, (C_1-C_4) Alkoxy und (C_1-C_4) Alkoxy-carbonyl substituiert ist, oder
- R^2 und R^3 gemeinsam mit dem Stickstoffatom der Gruppe NR^2R^3 einen heterocyclischen Rest mit 3 bis 6 Ringatomen und 1 bis 2 Heteroringatomen, wobei neben dem N-Atom das gegebenenfalls weitere Heteroringatom aus der Gruppe N und O ausgewählt ist und der Rest unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C_1-C_4) Alkyl und Oxo substituiert ist,
- R^4 Wasserstoff, Amino, Formyl, (C_1-C_4) Alkyl, Di- $[(C_1-C_4)$ alkyl]-amino, (C_1-C_4) Alkoxy- (C_1-C_4) alkyl, (C_3-C_6) Alkenyl, (C_3-C_6) Alkynyl, (C_1-C_4) Dialkylamino- (C_1-C_4) alkyl, Phenyl, Phenoxy- (C_1-C_4) alkyl, Phenyl- (C_1-C_4) alkyl, Phenoxy-carbonyl, Phenylamino-carbonyl oder einen der letztgenannten fünf Reste, der im Phenylteil einfach bis dreifach durch Reste aus der Gruppe Halogen, (C_1-C_4) Alkyl, (C_1-C_4) Alkoxy und (C_1-C_4) Alkoxy-carbonyl substituiert ist,
- R^5 Wasserstoff, (C_1-C_4) Alkyl, (C_1-C_4) Haloalkyl oder (C_3-C_7) Cycloalkyl,
- A-Z eine divalente Brücke der Formel
- CH₂CH₂-, -CH₂CH₂CH₂-, -CH₂CH₂CH₂CH₂-,
 - S-CH₂CH₂S-, -S-CH₂CH₂-O-, -O-CH₂CH₂-O-,
 - CH₂CH₂CH₂-NR-, -CH₂CH₂CH₂-O-, -CH₂CH₂CH₂-S-,
 - S-CH=CH-S-, O-CH=CH-O-,
 - CH=CH-CH₂-O-, -O-CH=CH-S-,
 - CH₂CH₂NR-,
 - O-CH=N-,
 - S-CH=N-,
 - NR-CH=N-,



wobei R in den Gruppen NR jeweils H oder Methyl bedeutet,

(X')_m m Substituenten X' und dabei X' jeweils unabhängig voneinander Halogen, (C₁-C₄)Alkyl oder (C₁-C₄)Alkoxy,

(X)_n n Substituenten X und dabei X jeweils unabhängig voneinander Halogen, Hydroxy, (C₁-C₄)Alkyl oder (C₁-C₄)Alkoxy

B¹ eine direkte Bindung oder eine divalente Gruppe der Formel -O-, -S- oder -O-CO-,

Y¹ H, (C₁-C₄)Alkyl, (C₃-C₆)Cycloalkyl oder Phenyl, das unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C₁-C₄)Alkyl, (C₁-C₄)Haloalkyl, (C₁-C₄)Alkoxy, (C₁-C₄)Haloalkoxy, Mono- und Dialkylamino substituiert ist,

bedeuten.

5. Verbindungen der Formel (I) und deren Salze nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß

R¹ (C₁-C₄)Alkyl, (C₁-C₄)Haloalkyl oder [(C₃-C₆)Cycloalkyl]-methyl,

R² und R³ unabhängig voneinander Wasserstoff, Formyl oder (C₁-C₄)Alkyl oder

R² und R³ gemeinsam mit dem Stickstoffatom der Gruppe NR²R³ einen heterocyclischen Rest mit 4 bis 6 Ringatomen und 1 bis 2 Heteroringatomen, wobei neben dem N-Atom das gegebenenfalls weitere Heteroringatom aus der Gruppe N und O ausgewählt ist,

R⁴ Wasserstoff oder (C₁-C₄)Alkyl,

R⁵ H oder (C₁-C₄)Alkyl,

A-Z eine divalente Brücke der Formel



$-S-CH_2CH_2S$, $-O-CH_2CH_2-O-$,
 $-CH_2CH_2CH_2-NR-$, $-CH_2CH_2CH_2-O-$, $-CH_2CH_2CH_2-S-$,
 $-CH_2CH_2NR-$,
 $-N=CH-O-$, $-N=CH-S-$, $-N=CH-NR$,
 $-N=CH-CH=N-$,
 $-CH=CH-CH_2-$,
 $-CH=CH-CH=CH-$ oder
 $-CH=CH-NR$,

wobei R in den Gruppen NR jeweils H oder Methyl, vorzugsweise H, bedeutet,

$(X')_m$ m Substituenten X' und dabei X' jeweils unabhängig voneinander Halogen oder (C_1-C_4) Alkyl,

$(X)_n$ n Substituenten X und dabei X jeweils unabhängig voneinander Halogen, Hydroxy, (C_1-C_4) Alkyl oder (C_1-C_4) Alkoxy

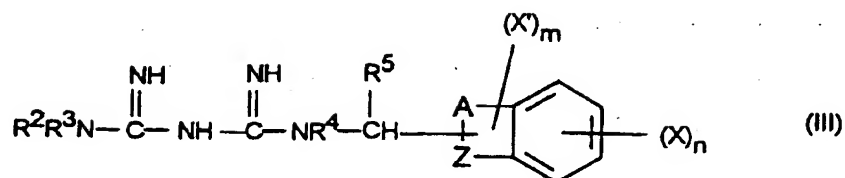
bedeuten.

6. Verfahren zur Herstellung der Verbindungen der allgemeinen Formel (I) oder deren Salze wie sie in Anspruch 1 definiert sind, dadurch gekennzeichnet, daß man

a) eine Verbindung der Formel (II),

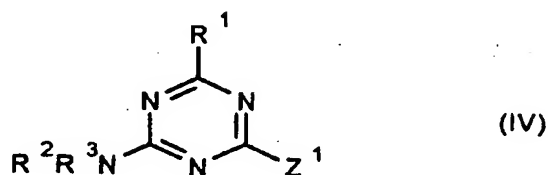


worin Fu eine funktionelle Gruppe aus der Gruppe Carbonsäureester, Carbonsäureorthoester, Carbonsäurechlorid, Carbonsäureamid, Carbonsäureanhydrid und Trichlormethyl bedeutet, mit einem Biguanidid der Formel (III) oder einem Säureadditionssalz hiervon

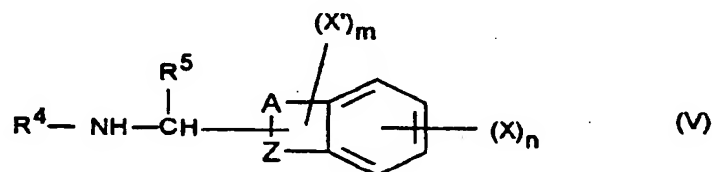


umsetzt oder

- b) eine Verbindung der Formel (IV),



worin Z^1 einen austauschfähigen Rest oder eine Abgangsgruppe, z.B. Chlor, Trichlormethyl, $(\text{C}_1\text{-C}_4)$ Alkylsulfonyl und unsubstituiertes oder substituiertes Phenyl- $(\text{C}_1\text{-C}_4)$ alkylsulfonyl oder $(\text{C}_1\text{-C}_4)$ Alkylphenylsulfonyl, bedeutet, mit einem geeigneten Amin der Formel (V) oder einem Säureadditionssalz hiervon



umsetzt,

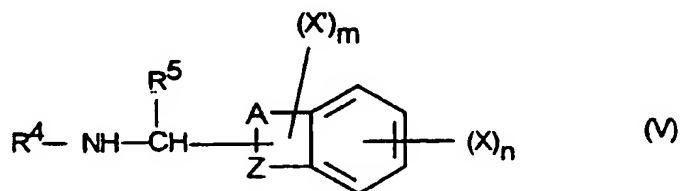
wobei in den Formeln (II), (III), (IV) und (V) die Reste R^1 , R^2 , R^3 , R^4 , R^5 , A, X' , X, m und n wie in Formel (I) definiert sind.

7. Herbizides oder pflanzenwachstumsregulierende Mittel, dadurch gekennzeichnet, daß es mindestens eine Verbindung der Formel (I) oder deren Salz nach einem der Ansprüche 1 bis 5 und im Pflanzenschutz übliche Formulierungshilfsmittel enthält.

8. Verfahren zur Bekämpfung von Schadpflanzen oder zur Wachstumsregulierung von Pflanzen, dadurch gekennzeichnet, daß man eine wirksame Menge von mindestens einer Verbindung der Formel (I) oder deren Salz nach einem der Ansprüche 1 bis 5 auf die Pflanzen, Pflanzensamen oder die Anbaufläche appliziert.

9. Verwendung von Verbindungen der Formel (I) oder deren Salze nach einem der Ansprüche 1 bis 5 als Herbizide und Pflanzenwachstumsregulatoren.

10. Verbindungen der Formel (V)



wie sie in Anspruch 6 definiert sind.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No
PCT/EP 97/00472

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 6 C07D251/18 A01N43/68 C07D405/14 C07D409/12 C07D409/14
C07D411/12 C07D405/12 C07D401/12 C07D413/12 C07D417/12
C07D403/12

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 6 C07D A01N C07C

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	EP 0 411 153 A (IDEMITSU KOSAN CO) 6 February 1991 see the whole document & WO 90 09378 A cited in the application ---	1,7
Y	EP 0 620 220 A (IDEMITSU KOSAN CO) 19 October 1994 see the whole document & WO 90 09378 A cited in the application ---	1,7
Y	EP 0 283 522 A (IDEMITSU KOSAN CO) 28 September 1988 see the whole document & WO 88 02368 A cited in the application ---	1,7
-/--		

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents:

- *A* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- *E* earlier document but published on or after the international filing date
- *L* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- *O* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- *P* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- *T* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- *X* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- *Y* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- *A* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

7 May 1997

Date of mailing of the international search report

3 0. 05. 97

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Frelon, D

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No
PCT/EP 97/00472

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A,P	DE 195 22 137 A (HOECHST SCHERING AGREVO GMBH) 2 January 1997 cited in the application see the whole document ---	1,7
X,P	EP 0 749 970 A (BAYER AG) 27 December 1996 see the whole document ---	10
X	EP 0 683 236 A (SANOFI SA ;MIDY SPA (IT)) 22 November 1995 * compounds (III), page 4; examples 8, 16 * ---	10
X	EP 0 678 579 A (MIDY SPA) 25 October 1995 * compounds III, page 4; example 8 * ---	10
X	EP 0 661 274 A (TANABE SEIYAKU CO) 5 July 1995 see the whole document ---	10
X	EP 0 589 037 A (ZERIA PHARM CO LTD) 30 March 1994 see the whole document ---	10
X	EP 0 534 859 A (ADIR) 31 March 1993 see the whole document ---	10
X	EP 0 483 667 A (THOMAE GMBH DR K) 6 May 1992 see the whole document ---	10
X	EP 0 436 435 A (SANOFI SA ;MIDY SPA (IT)) 10 July 1991 see claims 9-11 ---	10
X	EP 0 361 577 A (AKZO NV) 4 April 1990 see examples ---	10
X	EP 0 352 613 A (BAYER AG) 31 January 1990 see the whole document ---	10
X	EP 0 213 080 A (CIBA GEIGY AG) 4 March 1987 see examples ---	10
X	EP 0 338 793 A (WELLCOME FOUND) 25 October 1989 see page 7 ---	10
X	EP 0 043 194 A (FISONS PLC) 6 January 1982 see the whole document ---	10

-/--

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 97/00472

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 95 24393 A (FUJISAWA PHARMACEUTICAL CO ;TANIGUCHI KIYOSHI (JP); NAGANO MASANOB) 14 September 1995 * compounds VIII, page 6; XXXIX, page 20 *	10
X	WO 95 08527 A (TOKYO TANABE CO ;TSUCHIYA SUSUMU (JP); HIRATSUKA KOZO (JP); FUKUZA) 30 March 1995 see the whole document	10
X	US 3 929 784 A (RICHARDS HUGH COLIN) 30 December 1975 see the whole document	10
X	US 3 821 228 A (RICHARDS H) 28 June 1974 see the whole document	10
X	FR 2 000 204 A (PFIZER CORPORATION) 29 August 1969 see page 2	10
X	US 3 829 573 A (RICHARDS H) 13 August 1974 see column 2	10
X	GB 1 166 538 A (PFIZER LTD) 8 October 1969 see the whole document	10
X,P	DATABASE WPI Week 9628 Derwent Publications Ltd., London, GB; AN 96-272740 XP002030579 & JP 08 113 554 A (ZERIA SHINYAKU KOGYO K.K.) , 7 May 1996 see abstract; example 11	10
X	CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 92, no. 9, 3 March 1980 Columbus, Ohio, US; abstract no. 69219v, XP002030574 see examples I,V & XENOBIOTICA, vol. 9, no. 5, 1979, pages 323-332, N.M. WOOLHOUSE AND AL.:	10

-/--

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No
PCT/EP 97/00472

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 92, no. 23, 9 June 1980 Columbus, Ohio, US; abstract no. 191078p, XP002030575 see abstract & JOURNAL OF MEDICINAL CHEMISTRY, vol. 23, no. 5, 1980, WASHINGTON US, pages 502-505, J.G. CANNON ET AL.:	10
X	--- CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 87, no. 5, 1 August 1977 Columbus, Ohio, US; abstract no. 33435v, XP002030576 see example III & JOURNAL OF MEDICINAL CHEMISTRY, vol. 20, no. 6, 1977, WASHINGTON US, pages 771-776, R.F. BORNE ET AL.:	10
X	--- CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 85, no. 17, 25 October 1976 Columbus, Ohio, US; abstract no. 122909d, XP002030577 see example II & KRATK. TEZISY - VSES. SOVESHCH. PROBL. MEKH. GETEROLITICHESKIKH REAKTS., 1974, pages 103-104, A.G. SAKHABUTDINOV ET AL.:	10
X	--- CH 485 647 A (CIBA LTD) 15 February 1970 see examples	10
X	--- CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 70, no. 1, 6 January 1969 Columbus, Ohio, US; abstract no. 3950r, XP002030578 see abstract & JOURNAL OF MEDICINAL CHEMISTRY, vol. 11, no. 6, 1968, WASHINGTON US, pages 1161-1164, W.B. WRIGHT JR.:	10

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/EP 97/00472

Box I Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 1 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:

2. ☒ Claims Nos.: 10
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
see annex

3. ☐ Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box II Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 2 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☐ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:

4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest

- ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.
☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

According to EPC Article 83/84, the invention must be described clearly and concisely in the patent claims. The wording of claim 10, with its very broad and general definitions of the variable parts and the confusing proliferation of sub-variants of each variant, does not meet this requirement. The bewilderingly large number of compounds which might in theory be produced from the claimed possible combinations and which are only in part supported by the description, make a meaningful, complete and economical search impossible (cf. Guidelines, B-III, 2.1, 3.7).

Given the lack of precision in the wording and the inadequate support of the claims, the search was restricted to the major part of the examples.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 97/00472

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 0411153 A	06-02-91	AT 142630 T AU 628138 B AU 5082790 A CA 2027562 A,C DE 69028461 D DE 69028461 T EP 0620220 A ES 2094150 T WO 9009378 A JP 7112981 A JP 7039400 B KR 9401728 B LV 10864 B RU 2058983 C US 5403815 A US 5290754 A LT 640 A,B	15-09-96 10-09-92 05-09-90 21-08-90 17-10-96 06-02-97 19-10-94 16-01-97 23-08-90 02-05-95 01-05-95 05-03-94 20-06-96 27-04-96 04-04-95 01-03-94 27-12-94
EP 0620220 A	19-10-94	AT 142630 T AU 628138 B AU 5082790 A CA 2027562 A,C DE 69028461 D DE 69028461 T EP 0411153 A ES 2094150 T WO 9009378 A JP 7112981 A JP 7039400 B KR 9401728 B LV 10864 B RU 2058983 C US 5403815 A US 5290754 A LT 640 A,B	15-09-96 10-09-92 05-09-90 21-08-90 17-10-96 06-02-97 06-02-91 16-01-97 23-08-90 02-05-95 01-05-95 05-03-94 20-06-96 27-04-96 04-04-95 01-03-94 27-12-94
EP 0283522 A	28-09-88	WO 8802368 A JP 7010861 B US 4932998 A	07-04-88 08-02-95 12-06-90

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No
PCT/EP 97/00472

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
DE 19522137 A	02-01-97	AU 6301296 A WO 9700254 A	15-01-97 03-01-97
EP 0749970 A	27-12-96	DE 19522088 A AU 5593896 A CA 2179205 A CN 1143079 A JP 9003068 A NO 962579 A	02-01-97 09-01-97 20-12-96 19-02-97 07-01-97 20-12-96
EP 0683236 A	22-11-95	EP 0678579 A JP 8038193 A US 5573949 A	25-10-95 13-02-96 12-11-96
EP 0678579 A	25-10-95	EP 0683236 A JP 8038193 A US 5573949 A	22-11-95 13-02-96 12-11-96
EP 0661274 A	05-07-95	CA 2139088 A CN 1107843 A JP 7233151 A US 5605901 A US 5543409 A	29-06-95 06-09-95 05-09-95 25-02-97 06-08-96
EP 0589037 A	30-03-94	AU 651182 B DE 69211133 D DE 69211133 T US 5409956 A AT 138645 T AU 1338492 A CA 2105067 A ES 2090611 T WO 9215558 A JP 2558208 B	14-07-94 04-07-96 31-10-96 25-04-95 15-06-96 06-10-92 02-09-92 16-10-96 17-09-92 27-11-96
EP 0534859 A	31-03-93	FR 2681862 A AT 114151 T AU 649164 B AU 2533392 A CA 2079189 A	02-04-93 15-12-94 12-05-94 01-04-93 28-03-93

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 97/00472

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 0534859 A		DE 69200685 D	22-12-94
		DE 69200685 T	14-06-95
		ES 2067314 T	16-03-95
		JP 5213890 A	24-08-93
		JP 6076386 B	28-09-94
		NZ 244490 A	26-07-94
		US 5296482 A	22-03-94
		ZA 9207382 A	30-04-93

EP 0483667 A	06-05-92	DE 4035961 A	07-05-92
		AU 650488 B	23-06-94
		AU 8692691 A	07-05-92
		CA 2054850 A	03-05-92
		HU 67288 A	28-03-95
		HU 9500156 A	28-12-95
		IL 99926 A	18-06-96
		JP 4264068 A	18-09-92
		NO 174806 B	05-04-94
		NZ 240463 A	24-04-97
		RU 2040519 C	25-07-95
		US 5541343 A	30-07-96
		US 5591769 A	07-01-97
		ZA 9108734 A	04-05-93

EP 0436435 A	10-07-91	FR 2656607 A	05-07-91
		CA 2033243 A	30-06-91
		DE 69007603 D	28-04-94
		DE 69007603 T	30-06-94
		ES 2054304 T	01-08-94
		IE 65511 B	01-11-95
		JP 2521191 B	31-07-96
		JP 4210663 A	31-07-92
		US 5130339 A	14-07-92

EP 0361577 A	04-04-90	AU 619344 B	23-01-92
		AU 4155289 A	22-03-90
		CA 1325011 A	07-12-93
		ES 2055011 T	16-08-94
		JP 2134347 A	23-05-90
		PT 91743 B	31-05-95

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No
PCT/EP 97/00472

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 0361577 A		US 4980354 A	25-12-90
EP 0352613 A	31-01-90	DE 3901814 A	01-02-90
		AU 627478 B	27-08-92
		AU 3898989 A	01-02-90
		CN 1039809 A,B	21-02-90
		DE 58907493 D	26-05-94
		ES 2052829 T	16-07-94
		FI 95246 B	29-09-95
		HK 38695 A	24-03-95
		HU 211160 B	30-10-95
		IE 62704 B	22-02-95
		IL 91126 A	30-03-95
		JP 2096552 A	09-04-90
		NO 177144 B	18-04-95
		PT 91299 B	01-03-95
		SG 12595 A	16-06-95
		US 5506246 A	09-04-96
		US 5137901 A	11-08-92
		US 5585392 A	17-12-96
		US 5300523 A	05-04-94
EP 0213080 A	04-03-87	AU 606314 B	07-02-91
		AU 6186486 A	05-03-87
		CA 1295332 A	04-02-92
		DE 3685382 A	25-06-92
		IE 58752 B	03-11-93
		US 4833169 A	23-05-89
		US 4939160 A	03-07-90
		JP 1799993 C	12-11-93
		JP 5005828 B	25-01-93
		JP 62051650 A	06-03-87
EP 0338793 A	25-10-89	AU 626850 B	13-08-92
		AU 3322189 A	26-10-89
		CA 1332615 A	18-10-94
		DE 68910165 D	02-12-93
		DE 68910165 T	28-04-94
		ES 2059737 T	16-11-94
		FI 91398 B	15-03-94

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 97/00472

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 0338793 A		IL 90043 A	24-01-95
		JP 2006461 A	10-01-90
		PT 90307 B	30-09-94
		US 5102914 A	07-04-92
		US 5194450 A	16-03-93
EP 0043194 A	06-01-82	AU 528084 B	14-04-83
		AU 7188081 A	24-12-81
		JP 57031647 A	20-02-82
WO 9524393 A	14-09-95	AU 1861895 A	25-09-95
		EP 0749424 A	27-12-96
WO 9508527 A	30-03-95	AU 7665894 A	10-04-95
US 3929784 A	30-12-75	US 3821228 A	28-06-74
		US 3903283 A	02-09-75
		CH 498116 A	31-10-70
		DE 1770595 A	02-03-72
		FR 7680 M	16-02-70
		GB 1166538 A	08-10-69
		NL 6808151 A,B	11-12-68
		US 3925391 A	09-12-75
US 3821228 A	28-06-74	US 3903283 A	02-09-75
		CH 498116 A	31-10-70
		DE 1770595 A	02-03-72
		FR 7680 M	16-02-70
		GB 1166538 A	08-10-69
		NL 6808151 A,B	11-12-68
		US 3925391 A	09-12-75
		US 3929784 A	30-12-75
FR 2000204 A	29-08-69	CH 502352 A	31-01-71
		DE 1901262 A	28-08-69
		GB 1251821 A	03-11-71
		US 3899490 A	12-08-75
US 3829573 A	13-08-74	US 3899490 A	12-08-75

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

information on patent family members

International Application No

PCT/EP 97/00472

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
GB 1166538 A	08-10-69	US 3821228 A	28-06-74
		US 3903283 A	02-09-75
		CH 498116 A	31-10-70
		DE 1770595 A	02-03-72
		FR 7680 M	16-02-70
		NL 6808151 A,B	11-12-68
		US 3925391 A	09-12-75
		US 3929784 A	30-12-75
<hr/>			
CH 485647 A	15-02-70	NONE	
<hr/>			

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Inter- nales Aktenzeichen

PCT/EP 97/00472

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES IPK 6 C07D251/18 A01N43/68 C07D405/14 C07D409/12 C07D409/14 C07D411/12 C07D405/12 C07D401/12 C07D413/12 C07D417/12 C07D403/12		
Nach der internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK		
B. RECHERCHIERTE GEBIETE Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole) IPK 6 C07D A01N C07C		
Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen		
Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)		
C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Y	EP 0 411 153 A (IDEMITSU KOSAN CO) 6. Februar 1991 siehe das ganze Dokument & WO 90 09378 A in der Anmeldung erwähnt ---	1,7
Y	EP 0 620 220 A (IDEMITSU KOSAN CO) 19. Oktober 1994 siehe das ganze Dokument & WO 90 09378 A in der Anmeldung erwähnt ---	1,7
Y	EP 0 283 522 A (IDEMITSU KOSAN CO) 28. September 1988 siehe das ganze Dokument & WO 88 02368 A in der Anmeldung erwähnt ---	1,7
-/-		
<input checked="" type="checkbox"/> Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen		
<input checked="" type="checkbox"/> Siehe Anhang Patentfamilie		
* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen : "A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist "E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist "L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt) "O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benützung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht "P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist "T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist "X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden "Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist "&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist		
Datum des Abschlusses der internationalen Recherche 7. Mai 1997		Absenddatum des internationalen Recherchenberichts 30. 05. 97
Name und Postanschrift der internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl. Fax (+31-70) 340-3016		Bevollmächtigter Beauftragter Frelon, D

Formblatt PCT/ISA/210 (Blatt 2) (Juli 1992)

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internat. Aktenzeichen
PCT/EP 97/00472

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A,P	DE 195 22 137 A (HOECHST SCHERING AGREVO GMBH) 2.Januar 1997 in der Anmeldung erwähnt siehe das ganze Dokument ---	1,7
X,P	EP 0 749 970 A (BAYER AG) 27.Dezember 1996 siehe das ganze Dokument ---	10
X	EP 0 683 236 A (SANOFI SA ;MIDY SPA (IT)) 22.November 1995 * Verbindungen (III), Seite 4; Beispiele 8,16 *	10
X	EP 0 678 579 A (MIDY SPA) 25.Oktober 1995 * Verbindungen III, Seite 4; Beispiel 8 *	10
X	EP 0 661 274 A (TANABE SEIYAKU CO) 5.Juli 1995 siehe das ganze Dokument ---	10
X	EP 0 589 037 A (ZERIA PHARM CO LTD) 30.März 1994 siehe das ganze Dokument ---	10
X	EP 0 534 859 A (ADIR) 31.März 1993 siehe das ganze Dokument ---	10
X	EP 0 483 667 A (THOMAE GMBH DR K) 6.Mai 1992 siehe das ganze Dokument ---	10
X	EP 0 436 435 A (SANOFI SA ;MIDY SPA (IT)) 10.Juli 1991 siehe Ansprüche 9-11 ---	10
X	EP 0 361 577 A (AKZO NV) 4.April 1990 siehe Beispiele ---	10
X	EP 0 352 613 A (BAYER AG) 31.Januar 1990 siehe das ganze Dokument ---	10
X	EP 0 213 080 A (CIBA GEIGY AG) 4.März 1987 siehe Beispiele ---	10
X	EP 0 338 793 A (WELLCOME FOUND) 25.Oktober 1989 siehe Seite 7 ---	10
X	EP 0 043 194 A (FISONS PLC) 6.Januar 1982 siehe das ganze Dokument ---	10

-/--

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	WO 95 24393 A (FUJISAWA PHARMACEUTICAL CO ;TANIGUCHI KIYOSHI (JP); NAGANO MASANOB) 14.September 1995 * Verbindungen VIII, Seite 6; XXXIX, Seite 20 *	10
X	--- WO 95 08527 A (TOKYO TANABE CO ;TSUCHIYA SUSUMU (JP); HIRATSUKA KOZO (JP); FUKUZA) 30.März 1995 siehe das ganze Dokument	10
X	--- US 3 929 784 A (RICHARDS HUGH COLIN) 30.Dezember 1975 siehe das ganze Dokument	10
X	--- US 3 821 228 A (RICHARDS H) 28.Juni 1974 siehe das ganze Dokument	10
X	--- FR 2 000 204 A (PFIZER CORPORATION) 29.August 1969 siehe Seite 2	10
X	--- US 3 829 573 A (RICHARDS H) 13.August 1974 siehe Spalte 2	10
X	--- GB 1 166 538 A (PFIZER LTD) 8.Oktober 1969 siehe das ganze Dokument	10
X,P	--- DATABASE WPI Week 9628 Derwent Publications Ltd., London, GB; AN 96-272740 XP002030579 & JP 08 113 554 A (ZERIA SHINYAKU KOGYO K.K.) , 7.Mai 1996 siehe Zusammenfassung; Beispiel II	10
X	--- CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 92, no. 9, 3.März 1980 Columbus, Ohio, US; abstract no. 69219v, XP002030574 siehe Beispiele I,V & XENOBIOTICA, Bd. 9, Nr. 5, 1979, Seiten 323-332, N.M. WOOLHOUSE AND AL.: ---	10

-/--

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Inter sales Aktenzeichen
PCT/EP 97/00472

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 92, no. 23, 9.Juni 1980 Columbus, Ohio, US; abstract no. 191078p, XP002030575 siehe Zusammenfassung & JOURNAL OF MEDICINAL CHEMISTRY, Bd. 23, Nr. 5, 1980, WASHINGTON US, Seiten 502-505, J.G. CANNON ET AL.: ---	10
X	CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 87, no. 5, 1.August 1977 Columbus, Ohio, US; abstract no. 33435v, XP002030576 siehe Beispiel III & JOURNAL OF MEDICINAL CHEMISTRY, Bd. 20, Nr. 6, 1977, WASHINGTON US, Seiten 771-776, R.F. BORNE ET AL.: ---	10
X	CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 85, no. 17, 25.Oktober 1976 Columbus, Ohio, US; abstract no. 122909d, XP002030577 siehe Beispiel II & KRATK. TEZISY - VSES. SOVESHCH. PROBL. MEKH. GETEROLITICHESKIKH REAKTS., 1974, Seiten 103-104, A.G. SAKHABUTDINOV ET AL.: ---	10
X	CH 485 647 A (CIBA LTD) 15.Februar 1970 siehe Beispiele ---	10
X	CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 70, no. 1, 6.Januar 1969 Columbus, Ohio, US; abstract no. 3950r, XP002030578 siehe Zusammenfassung & JOURNAL OF MEDICINAL CHEMISTRY, Bd. 11, Nr. 6, 1968, WASHINGTON US, Seiten 1161-1164, W.B. WRIGHT JR.: -----	10

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

ationales Aktenzeichen

PCT/EP 97/00472

Feld I Bemerkungen zu den Ansprüchen, die sich als nicht recherchierbar erwiesen haben (Fortsetzung von Punkt 1 auf Blatt 1)

Gemäß Artikel 17(2)a) wurde aus folgenden Gründen für bestimmte Ansprüche kein Recherchenbericht erstellt:

1. ☐ Ansprüche Nr.
 weil Sie sich auf Gegenstände beziehen, zu deren Recherche die Behörde nicht verpflichtet ist, nämlich

2. ☒ Ansprüche Nr. 10
 weil sie sich auf Teile der internationalen Anmeldung beziehen, die den vorgeschriebenen Anforderungen so wenig entsprechen, daß eine sinnvolle internationale Recherche nicht durchgeführt werden kann, nämlich
 see annex

3. ☐ Ansprüche Nr.
 weil es sich dabei um abhängige Ansprüche handelt, die nicht entsprechend Satz 2 und 3 der Regel 6.4 a) abgefaßt sind.

Feld II Bemerkungen bei mangelnder Einheitlichkeit der Erfindung (Fortsetzung von Punkt 2 auf Blatt 1)

Die internationale Recherchenbehörde hat festgestellt, daß diese internationale Anmeldung mehrere Erfindungen enthält:

1. ☐ Da der Anmelder alle erforderlichen zusätzlichen Recherchengebühren rechtzeitig entrichtet hat, erstreckt sich dieser internationale Recherchenbericht auf alle recherchierbaren Ansprüche der internationalen Anmeldung.

2. ☐ Da für alle recherchierbaren Ansprüche die Recherche ohne einen Arbeitsaufwand durchgeführt werden konnte, der eine zusätzliche Recherchengebühr gerechtfertigt hätte, hat die Internationale Recherchenbehörde nicht zur Zahlung einer solchen Gebühr aufgefordert.

3. ☐ Da der Anmelder nur einige der erforderlichen zusätzlichen Recherchengebühren rechtzeitig entrichtet hat, erstreckt sich dieser internationale Recherchenbericht nur auf die Ansprüche der internationalen Anmeldung, für die Gebühren entrichtet worden sind, nämlich auf die Ansprüche Nr.

4. ☐ Der Anmelder hat die erforderlichen zusätzlichen Recherchengebühren nicht rechtzeitig entrichtet. Der internationale Recherchenbericht beschränkt sich daher auf die in den Ansprüchen zuerst erwähnte Erfindung; diese ist in folgenden Ansprüchen erfaßt:

Bemerkungen hinsichtlich eines Widerspruchs

- ☐ Die zusätzlichen Gebühren wurden vom Anmelder unter Widerspruch gezahlt.
- ☐ Die Zahlung zusätzlicher Gebühren erfolgte ohne Widerspruch.

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP 97/ 00472

WEITERE ANGABEN

PCT/ISA/ 210

Gemäss Art.83/84 EPU muss der Gegenstand der Erfindung in den Patentansprüchen deutlich und knapp gefasst werden. Dem widerspricht die Abfassung des Anspruches 10 mit extrem breiten und allgemeinen gehaltenen Definitionen der variablen Teile und sowie die unübersichtlichen Verzweigungen jeder Varianten in weiteren Untereinheiten.

Die unübersehbar grosse Anzahl an theoretisch denkbaren Verbindungen, die sich beanspruchten Kombinationsmöglichkeiten ergeben und die nur teilweise durch die Beschreibung gestützt werden, schliessen eine sinnvolle, vollständige und ökonomische Recherche aus (siehe Richtlinien B-III,2.1,3.7)

Aufgrund der mangelnden Präzision in den Formulierungen und der fehlenden Stützung der Ansprüche wurde die Recherche unter Berücksichtigung der überwiegenden Anteile der Beispiele beschränkt.

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichung... die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 97/00472

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
EP 0411153 A	06-02-91	AT 142630 T	15-09-96
		AU 628138 B	10-09-92
		AU 5082790 A	05-09-90
		CA 2027562 A,C	21-08-90
		DE 69028461 D	17-10-96
		DE 69028461 T	06-02-97
		EP 0620220 A	19-10-94
		ES 2094150 T	16-01-97
		WO 9009378 A	23-08-90
		JP 7112981 A	02-05-95
		JP 7039400 B	01-05-95
		KR 9401728 B	05-03-94
		LV 10864 B	20-06-96
		RU 2058983 C	27-04-96
		US 5403815 A	04-04-95
		US 5290754 A	01-03-94
		LT 640 A,B	27-12-94
EP 0620220 A	19-10-94	AT 142630 T	15-09-96
		AU 628138 B	10-09-92
		AU 5082790 A	05-09-90
		CA 2027562 A,C	21-08-90
		DE 69028461 D	17-10-96
		DE 69028461 T	06-02-97
		EP 0411153 A	06-02-91
		ES 2094150 T	16-01-97
		WO 9009378 A	23-08-90
		JP 7112981 A	02-05-95
		JP 7039400 B	01-05-95
		KR 9401728 B	05-03-94
		LV 10864 B	20-06-96
		RU 2058983 C	27-04-96
		US 5403815 A	04-04-95
		US 5290754 A	01-03-94
		LT 640 A,B	27-12-94
EP 0283522 A	28-09-88	WO 8802368 A	07-04-88
		JP 7010861 B	08-02-95
		US 4932998 A	12-06-90

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 97/00472

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
DE 19522137 A	02-01-97	AU 6301296 A WO 9700254 A	15-01-97 03-01-97
EP 0749970 A	27-12-96	DE 19522088 A AU 5593896 A CA 2179205 A CN 1143079 A JP 9003068 A NO 962579 A	02-01-97 09-01-97 20-12-96 19-02-97 07-01-97 20-12-96
EP 0683236 A	22-11-95	EP 0678579 A JP 8038193 A US 5573949 A	25-10-95 13-02-96 12-11-96
EP 0678579 A	25-10-95	EP 0683236 A JP 8038193 A US 5573949 A	22-11-95 13-02-96 12-11-96
EP 0661274 A	05-07-95	CA 2139088 A CN 1107843 A JP 7233151 A US 5605901 A US 5543409 A	29-06-95 06-09-95 05-09-95 25-02-97 06-08-96
EP 0589037 A	30-03-94	AU 651182 B DE 69211133 D DE 69211133 T US 5409956 A AT 138645 T AU 1338492 A CA 2105067 A ES 2090611 T WO 9215558 A JP 2558208 B	14-07-94 04-07-96 31-10-96 25-04-95 15-06-96 06-10-92 02-09-92 16-10-96 17-09-92 27-11-96
EP 0534859 A	31-03-93	FR 2681862 A AT 114151 T AU 649164 B AU 2533392 A CA 2079189 A	02-04-93 15-12-94 12-05-94 01-04-93 28-03-93

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichung... die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 97/00472

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
EP 0534859 A		DE 69200685 D	22-12-94
		DE 69200685 T	14-06-95
		ES 2067314 T	16-03-95
		JP 5213890 A	24-08-93
		JP 6076386 B	28-09-94
		NZ 244490 A	26-07-94
		US 5296482 A	22-03-94
		ZA 9207382 A	30-04-93

EP 0483667 A	06-05-92	DE 4035961 A	07-05-92
		AU 650488 B	23-06-94
		AU 8692691 A	07-05-92
		CA 2054850 A	03-05-92
		HU 67288 A	28-03-95
		HU 9500156 A	28-12-95
		IL 99926 A	18-06-96
		JP 4264068 A	18-09-92
		NO 174806 B	05-04-94
		NZ 240463 A	24-04-97
		RU 2040519 C	25-07-95
		US 5541343 A	30-07-96
		US 5591769 A	07-01-97
		ZA 9108734 A	04-05-93

EP 0436435 A	10-07-91	FR 2656607 A	05-07-91
		CA 2033243 A	30-06-91
		DE 69007603 D	28-04-94
		DE 69007603 T	30-06-94
		ES 2054304 T	01-08-94
		IE 65511 B	01-11-95
		JP 2521191 B	31-07-96
		JP 4210663 A	31-07-92
US 5130339 A	14-07-92		

EP 0361577 A	04-04-90	AU 619344 B	23-01-92
		AU 4155289 A	22-03-90
		CA 1325011 A	07-12-93
		ES 2055011 T	16-08-94
		JP 2134347 A	23-05-90
		PT 91743 B	31-05-95

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 97/00472

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
EP 0361577 A		US 4980354 A	25-12-90
EP 0352613 A	31-01-90	DE 3901814 A	01-02-90
		AU 627478 B	27-08-92
		AU 3898989 A	01-02-90
		CN 1039809 A,B	21-02-90
		DE 58907493 D	26-05-94
		ES 2052829 T	16-07-94
		FI 95246 B	29-09-95
		HK 38695 A	24-03-95
		HU 211160 B	30-10-95
		IE 62704 B	22-02-95
		IL 91126 A	30-03-95
		JP 2096552 A	09-04-90
		NO 177144 B	18-04-95
		PT 91299 B	01-03-95
		SG 12595 A	16-06-95
		US 5506246 A	09-04-96
		US 5137901 A	11-08-92
		US 5585392 A	17-12-96
		US 5300523 A	05-04-94
EP 0213080 A	04-03-87	AU 606314 B	07-02-91
		AU 6186486 A	05-03-87
		CA 1295332 A	04-02-92
		DE 3685382 A	25-06-92
		IE 58752 B	03-11-93
		US 4833169 A	23-05-89
		US 4939160 A	03-07-90
		JP 1799993 C	12-11-93
		JP 5005828 B	25-01-93
		JP 62051650 A	06-03-87
EP 0338793 A	25-10-89	AU 626850 B	13-08-92
		AU 3322189 A	26-10-89
		CA 1332615 A	18-10-94
		DE 68910165 D	02-12-93
		DE 68910165 T	28-04-94
		ES 2059737 T	16-11-94
		FI 91398 B	15-03-94

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichung, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 97/00472

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
EP 0338793 A		IL 90043 A	24-01-95
		JP 2006461 A	10-01-90
		PT 90307 B	30-09-94
		US 5102914 A	07-04-92
		US 5194450 A	16-03-93

EP 0043194 A	06-01-82	AU 528084 B	14-04-83
		AU 7188081 A	24-12-81
		JP 57031647 A	20-02-82

WO 9524393 A	14-09-95	AU 1861895 A	25-09-95
		EP 0749424 A	27-12-96

WO 9508527 A	30-03-95	AU 7665894 A	10-04-95

US 3929784 A	30-12-75	US 3821228 A	28-06-74
		US 3903283 A	02-09-75
		CH 498116 A	31-10-70
		DE 1770595 A	02-03-72
		FR 7680 M	16-02-70
		GB 1166538 A	08-10-69
		NL 6808151 A,B	11-12-68
		US 3925391 A	09-12-75

US 3821228 A	28-06-74	US 3903283 A	02-09-75
		CH 498116 A	31-10-70
		DE 1770595 A	02-03-72
		FR 7680 M	16-02-70
		GB 1166538 A	08-10-69
		NL 6808151 A,B	11-12-68
		US 3925391 A	09-12-75
		US 3929784 A	30-12-75

FR 2000204 A	29-08-69	CH 502352 A	31-01-71
		DE 1901262 A	28-08-69
		GB 1251821 A	03-11-71
		US 3899490 A	12-08-75

US 3829573 A	13-08-74	US 3899490 A	12-08-75

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 97/00472

(in Recherchenbericht angeführtes Patentdokument)	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
GB 1166538 A	08-10-69	US 3821228 A	28-06-74
		US 3903283 A	02-09-75
		CH 498116 A	31-10-70
		DE 1770595 A	02-03-72
		FR 7680 M	16-02-70
		NL 6808151 A,B	11-12-68
		US 3925391 A	09-12-75
		US 3929784 A	30-12-75
CH 485647 A	15-02-70	KEINE	

THIS PAGE BLANK (USPTO)